

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001 年 3 月 22 日 (22.03.2001)

PCT

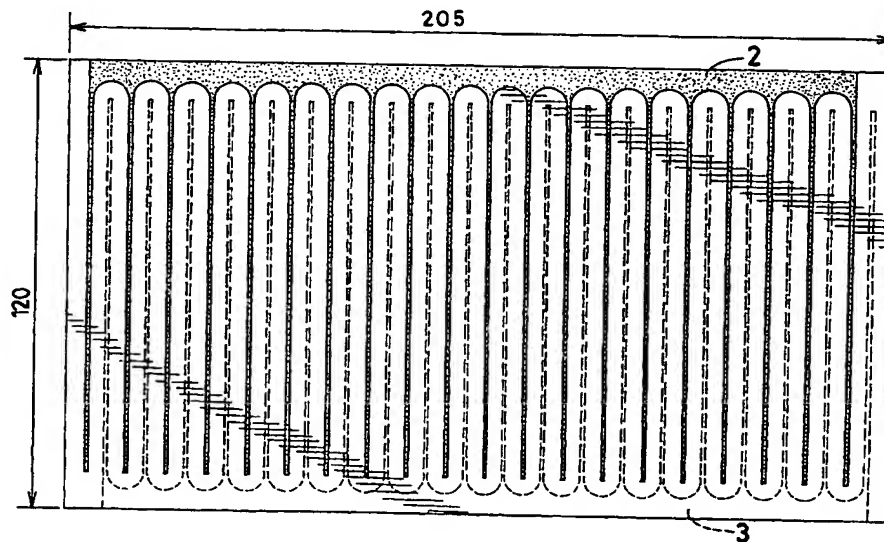
(10) 国際公開番号  
WO 01/19515 A1

- (51) 国際特許分類: B01J 35/02, [JP/JP]; 〒559-8559 大阪府大阪市住之江区南港北1丁目7番89号 Osaka (JP).  
B01D 53/86, 53/94, B01J 19/24, 19/08
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/06043
- (22) 国際出願日: 2000 年 9 月 6 日 (06.09.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願平 11/255205 1999 年 9 月 9 日 (09.09.1999) JP  
特願平 11/289087 1999 年 10 月 12 日 (12.10.1999) JP  
特願平 11/289088 1999 年 10 月 12 日 (12.10.1999) JP
- (71) 出願人 および  
(72) 発明者: 水野 彰 (MIZUNO, Akira) [JP/JP]; 〒460-0022 愛知県名古屋市中区金山1丁目4番2号1202 Aichi (JP).  
(72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 田中 三郎 (TANAKA, Saburo) [JP/JP]; 〒441-8105 愛知県豊橋市北山町字東浦10-34 Aichi (JP). 市来 正義 (ICHIKI, Masayoshi) [JP/JP]. 近藤 一博 (KONDO, Kazuhiro) [JP/JP]. 古林 通孝 (FURUBAYASHI, Michitaka) [JP/JP]. 浜野 修史 (HAMANO, Shuji) [JP/JP]; 〒559-8559 大阪府大阪市住之江区南港北1丁目7番89号 日立造船株式会社内 Osaka (JP).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日立造船株式会社 (HITACHI ZOSEN CORPORATION)

[続葉有]

(54) Title: CATALYST WITH DISCHARGE ELECTRODE OR CARRIER

(54) 発明の名称: 放電電極付き触媒または担体



(57) Abstract: A catalyst with a discharge electrode effectively applicable to a method for efficiently decomposing harmful substances such as dioxin in exhaust by plasma discharge, or a carrier for catalyst is disclosed. The catalyst with a discharge electrode or the carrier has a dotted pattern of electrode, a linear electrode which may intersect itself, or a bar-like electrode at least on one side of the plate-like or sheet-like catalyst or the carrier. The plate-like or sheet-like catalyst or carrier may be a cloth, board, or paper catalyst or carrier. The electrode is preferably formed at least on one side of the plate-like or sheet-like catalyst or carrier by printing conductive printing ink containing a metal such as silver, sintering a metal powder, vapor-depositing a metal, or sputtering a metal. The conductive ink may be pasty. A preferable shape of the electrode is comb-teeth.

[続葉有]

WO 01/19515 A1



(74) 代理人: 岸本瑛之助, 外 (KISHIMOTO, Einosuke et al.) ; 〒542-0086 大阪府大阪市中央区西心斎橋1丁目13番18号 イナバビル3階 岸本瑛之助特許事務所 Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): CA, JP, KR, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

---

(57) 要約:

本発明は、排ガス中のダイオキシン類などの有害物質をプラズマ放電によって効率的に分解する方法に効果的に適用できる、放電電極を備えた触媒または触媒用の担体を提供することを目的の1つとする。本発明は、板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、点状または、交差していてもよい線状もしくは棒状の電極を備えた放電電極付き触媒または担体を提供する。板状またはシート状の触媒または担体とは、クロス状、ボード状、ペーパー状などのものも含む。電極は、好ましくは、板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、銀等の金属を含む導電性印刷インキをプリントするか、金属粉末を焼結させるか、または金属を蒸着あるいはスパッタリングすることによって形成したものである。導電性インキはペースト状のものであってよい。好ましい電極の形状は、櫛歯形である。

## 明 細 書

## 放電電極付き触媒または担体

## 5 技術分野

本発明は、放電電極を備えた触媒または触媒用の担体に関し、また、放電電極を備えた触媒または触媒用の担体と、これらの間および／または外側に配された光触媒とからなる、放電電極を備えた触媒ブロックに関する。本発明は、さらに、

10 ゴミ焼却炉、各種ボイラー、ディーゼル機関等から出る排ガス中のダイオキシン類などの有害物質をプラズマ放電によって分解する方法および装置に関する。

背景技術

15 従来、光触媒は強い酸化力を持ち、これを用いてダイオキシン類を酸化分解できることが知られていた。ただし、光触媒が有効に作用するには、所定振動数の光量子を触媒粒子表面に照射する必要がある。そのため、反応容器内に多数の触媒粒子を充填した触媒充填床では、個々の粒子に十分な光量子を照射することは困難であり、光触媒が有効に作用しにくい。

20

そのため、光触媒の有する高い酸化・還元力を利用することにより排ガス中の有害物質の除去が可能ではあるが、高エネルギーの紫外線を触媒粒子表面に均一に照射することは困難であり、限られた空間に触媒を大量に充填することは不可能であり、反応容器は例えば脱硝反応器などと比べ大型となる上に、十分な光が照射されていない触媒部分では所定の活性が得られず、そこを通過する排ガスの反応率は低いので、

25

全体として高度な有害物質除去率が得られない嫌いがあった。

本発明の第1の目的は、上記諸問題を解決すべく、排ガス中のダイオキシン類などの有害物質をプラズマ放電によって効率的に分解する方法および装置を提供することである。

本発明の第2の目的は、排ガス中のダイオキシン類などの有害物質をプラズマ放電によって効率的に分解する方法に効果的に適用できる、放電電極を備えた触媒または触媒用の担体、また、放電電極を備えた触媒ブロックを提供することである。

### 発明の開示

本発明による第1の発明は、放電電極付き触媒または担体に関する。

第1の発明による放電電極付き触媒または担体は、板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、点状または、交差していてもよい線状もしくは棒状の電極を備えたものである。

板状またはシート状の触媒または担体とは、クロス状、ボード状、ペーパー状などのものも含む。

電極は、好ましくは、板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、銀、銅、場合によっては半田成分合金等の金属を含む導電性印刷インキをプリントするか、金属粉末を焼結させるか、または金属を蒸着あるいはスパッタリングすることによって形成したものである。導電性インキはペースト状のものであってもよい。

好ましい電極の形状は、櫛歯形である。櫛歯形の電極は、触媒または担体の表裏両面に、裏面電極の各櫛歯が表面電極



の各櫛歯とは逆を向くと共に表面電極の各櫛歯の間にそれぞれ位置するように、すなわち食い違い状に、形成されていることが好ましい。

好ましい触媒は、セラミック繊維で構成される板状または  
5 シート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセラミック繊維間に、触媒物質またはこれを担持した多孔質担体粒子を分散保持させたものである。触媒物質は、バナジウム、タングステン、モリブデン、チタン等の金属の酸化物、あるいは金、銀、白金、ロジウム、パラジウム、ルテニウム等の金属  
10 属もしくはその酸化物であってよい。

好ましい担体は、セラミック繊維で構成される板状またはシート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセラミック繊維間に、多孔質担体粒子を分散保持させたものである。

上記多孔質担体は、アルミナ、シリカ、シリカ・アルミナ、  
15 チタニア、ゼオライト、ジルコニア、酸化亜鉛などであってよい。

本発明は、高電圧印加による空間放電、絶縁体表面の表面電流発生などを利用して、固体触媒表面の帯電・分極、イオン化や反応物質の電子的分極などを起こさせ、触媒機能を発  
20 現または助長するものである。

一対の電極間に半導体粒子を充填し、電極間に高い電圧を印加すると、電子は周辺のガスをイオン化しながら粒子表面を走り（表面電流）、同時に固体結晶を構成する電子を励起しイオン化する。励起された電子が基底状態に戻るとき、電  
25 子は原子特有の光（殆ど紫外光）を発する。また、高エネルギーの電子が半導体結晶に衝突すると、複数の導電帯電子をはじき出し、光触媒の活性発現の基本と考えられる正孔も出現する。このような放電状態はプラズマ放電と呼ばれる。

以上のように、電極間に放電に必要な電圧を印加すれば、外部から紫外光を照射することなしに、光触媒の活性を励起することができる。

- 但し、このような放電が継続し気相、固相のイオン化が進むと、放電は著しい発熱を伴うアーク放電に移行し、触媒の熱劣化、エネルギー効率の低下をもたらす、好ましくない。そこで放電がアーク放電に移行する前に電極間電位を下げ、プラズマ放電を終結させることが望ましい。すなわち電極に高い交流電圧またはパルス電圧を印加することが望まれる。
- 10 この場合、高エネルギー効率を維持して放電量を増加させるには、交流電圧またはパルス電圧の周波数を上げる必要がある。

- このような現象を利用した反応装置は、ゴミ焼却炉排ガス中のダイオキシン類の酸化分解などに好適に使用され得る。
- 15 しかし、反応ガスがダスト、アッシュなどの固形分を含む場合、それらが粒子床に堆積し反応ガスの流通抵抗上昇を引き起こすばかりでなく、有効な放電を妨げ、極端な場合には電極間の短絡事故を招く恐れがあるので、反応ガスは反応器前流で十分除塵しておく必要がある。

- 20 第1の発明による放電電極付き触媒または担体は、板状またはシート状（クロス状、ボード状、ペーパー状などを含む）の触媒または触媒担体の表面に、点状または、交差していてもよい線状もしくは棒状の電極を設け、板状物を厚さ方向に貫通する放電を発生させ、板状またはシート状触媒または触媒担体全体から紫外光の放射を可能としたものである。
- 25

すなわち、陰極から放射された電子は半導体表面電流として陽極へと移動し、個体表面をイオン化し、多数の正孔を出現させる。同時に周辺ガスもイオン化し、ガス状の原子また

は分子の外殻電子を励起状態にする。励起状態の電子が基底状態に戻るとき、物質特有の紫外光を発する。紫外光のエネルギーで半導体には正孔が生ずる。これらの正孔の作用で酸化活性が発現する。

- 5 電極に印加する電圧は空間放電に必要な電圧（3 K V / m m）またはそれ以下で十分であるが、高い紫外光発光量、高い表面活性を得るためには、より高い電圧を印加することも可能である。印加電圧の低限界はプラズマ放電開始電圧であり、高限界は電極間の絶縁破壊発生電圧である。これらの値  
10 はいずれも半導体の種類、雰囲気ガスの組成、温度などによって適宜定められる。

- 電子流は電極間距離の短い通路に集中する傾向がある。また、電子流はこれから発生した各種イオンが存在する部分にも集中する傾向がある。したがって、板状の触媒または触媒  
15 担体を貫通する放電を均一に発生させるには、電極間距離を厳密に均一にする必要がある。

- 板状またはシート状の触媒または触媒担体の両面に電極を電極間距離が均一になるように配置した構造では、電子が触媒または触媒担体を貫通する抵抗と触媒または触媒担体の表面  
20 面を電子が移動する抵抗とが大きく異なるため、電極間距離のバラツキはさほど影響せず、触媒または触媒担体全面にほぼ均一の紫外発光が認められる。

- 上記のような点を考慮して、第1の発明は、具体的には、板状ないしはシート状の触媒または触媒担体の両面に櫛歯形  
25 の電極を板の表と裏で食い違い状に（例えば櫛歯間隔の1 / 2 ずらせて）配置してなる、放電電極を備えた触媒または触媒担体を提供する。

櫛歯形の電極の櫛歯太さは細いほど良いが、大型の板状な

いしはシート状の触媒または触媒担体においては、断線などに対する信頼性の点から、0.1～2mmが望ましい。櫛歯形の電極を製造するには導電性印刷インキを触媒または触媒担体の表裏両面にプリントする方法が、製造コスト、櫛歯間  
5 間隔の精度などから好適である。

板状ないしはシート状の触媒または触媒担体としては、板状ないしはシート状のセラミックス繊維プレフォーム体（シート状、ペーパー状、クロス状、ボード状など）からなるマトリックスの繊維間に、触媒または触媒担体微粒子を分散保  
10 持させたものが好適である。このような構造の触媒または触媒担体は、内部に比較的多量の空間が存在し、反応物質の拡散性が高く、さらに空間に存在するガスの励起により紫外線放射効率が上昇する。

上記構成の、放電電極を備えた触媒または触媒担体は、排  
15 ガス気流中で高い触媒活性を発現し、ダイオキシン類の酸化・分解、炭化水素類の酸化、NOの酸化などによる排ガスの浄化に有効に機能する。この場合、触媒または触媒担体は板状ないしはシート状であるので、ダストなど固形分による閉塞を起こしにくく、またダストなどの固形分が飛来するガス  
20 流に直接放電しないので、ダストの帯電が起こりにくく、触媒表面や電極へのダスト静電付着が起こりにくい。

本発明による第2の発明は、放電電極付き触媒ブロックに関する。

第2の発明による放電電極付き触媒ブロックは、少なくとも  
25 も片面に、点状または、交差していてもよい線状もしくは棒状の電極を備えた板状またはシート状の複数の電極付き触媒または担体と、これら電極付き触媒または担体の間および／または外側に配された光触媒とからなる。

上記触媒ブロックにおいて、板状またはシート状の触媒または担体とは、クロス状、ボード状、ペーパー状などのものも含む。好ましい電極付き担体は、セラミック繊維で構成される板状またはシート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセラミック繊維間に、多孔質担体粒子を分散保持させたものである。多孔質担体は、アルミナ、シリカ、シリカ・アルミナ、チタニア、ゼオライト、ジルコニア、酸化亜鉛などであってよい。

上記触媒ブロックにおいて、好ましい電極付き触媒および光触媒は、セラミック繊維で構成される板状またはシート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセラミック繊維間に、触媒物質またはこれを担持した多孔質担体粒子を分散保持させたものである。光触媒は、例えば粒状触媒、平板状または波板状のものであってもよい。触媒物質は、バナジウム、タングステン、モリブデン、チタン等の金属の酸化物、あるいは金、銀、白金、ロジウム、パラジウム、ルテニウム等の金属もしくはその酸化物であってよい。

上記触媒ブロックにおいて、好ましい電極は、板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、導電性印刷インキをプリントするか、金属粉末を焼結させるか、または金属を蒸着あるいはスパッタリングすることによって形成したものである。

電極の好ましい形状は櫛歯形であり、櫛歯形の電極は、好ましくは、板状またはシート状の触媒または担体の表裏両面に、裏面電極の各櫛歯が表面電極の各櫛歯とは逆を向くと共に表面電極の各櫛歯の間にそれぞれ位置するように、形成されている。

好ましい触媒ブロックは、電極付き触媒または担体が平板

状で、光触媒が波板状であり、電極付き触媒または担体と光触媒とが交互に重ね合わされ、全体としてハニカム状をなすものである。このようなハニカム状触媒ブロックにおいては、好ましくは、平板状の電極付き触媒または担体のガス流れ方向の各端部は、波板状の光触媒より突出し、この突出端にて櫛形電極の各背部分どうしが電極接続部材を介して接続される。電極接続部材としてはワイヤー、バー、シャフト、ベルトなどの形状の導電材が用いられる。電極接続部材が突出端にて櫛形電極の各背部分どうしを串差状に貫通または横断する構造により、隣接電極どうしが接続される。触媒使用時に、電極や電極接続部材の酸化などにより電氣的接触が不良になる可能性を考慮すれば、電極接続部材は複数設けることが好ましい。

第1の発明による放電電極付き触媒または担体、または第2の発明による放電電極付き触媒ブロックにおいて、一对の電極間に電極間間隔10mm当たり3～50KVの電圧を0.04～200KHzで印加し、両電極間に触媒または担体を介して放電を起こさせることによって、電極付き触媒または担体を活性化させることができる。

第1の発明による放電電極付き触媒または担体、または第2の発明による放電電極付き触媒ブロックは、例えば、これをガス流通経路内に設置して、一对の電極間に上記条件で電圧を印加し、両電極間に触媒または担体を介して放電を起こさせることによって、電極付き触媒または担体を活性化させ、ガス中の対象成分を接触反応させるガスの触媒反応方法に使用される。

ガスの触媒反応方法の具体例は、第1の発明による放電電極付き触媒または担体、または第2の発明による放電電極付

き触媒ブロックを燃焼排ガス流通経路内に設置し、同ガス中のダイオキシン類を酸化・分解し、一酸化窒素を酸化する方法や、第1の発明による放電電極付き触媒または担体、または第2の発明による放電電極付き触媒ブロックを有機性臭気成分含有ガス流通経路内に設置し、同ガス中の臭気成分を酸化・分解する方法である。

本発明による第3の発明は、ダイオキシン類の分解方法に関する。

10 第3の発明によるダイオキシン類の分解方法は、一對の電極の間に半導体特性を示す粒状触媒を充填し、電極間に電圧を印加して触媒粒子間にプラズマ放電を発生させ、処理すべき排ガスを触媒充填床に流通して排ガス中のダイオキシン類を分解する方法である。

15 上記排ガスは、例えばゴミ焼却設備等の燃焼装置から出るガスのように、ダイオキシン類と同時に窒素酸化物や炭化水素類を含むことが多い。

上記触媒は光触媒活性を有するものであり、例えばチタニア、酸化亜鉛、酸化鉄など、半導体特性を示す酸化物の粒状触媒や、アタナーゼチタニア担体に光触媒活性チタニア薄層をコーティングした触媒が好適に使用される。

電圧を高周波で、例えば周波数40Hz～10MHzで、断続的に印加することが好ましい。一對の電極の間の電界強度は好ましくは0.5～50KV/cmである。

25 上記方法の実施により、ダイオキシン類の分解と同時に、排ガス中のNOがNO<sub>2</sub>に変換され、および／または、炭化水素類がCO<sub>2</sub>に変換され得る。

第3の発明によるダイオキシン類分解装置は、排ガス煙道

に設けられた一対の電極と、一対の電極の間に設けられた、半導体特性を示す粒状触媒からなる触媒充填床と、電極間に電圧を印加して触媒粒子間にプラズマ放電を発生させる電源とからなり、プラズマ放電によって紫外線を発生させて光触媒を励起し、触媒充填床を流通する排ガス中のダイオキシン類を分解するものである。

排ガス煙道に一対の電極の前流に除塵装置（例えばバグフィルター）を付設し、後流に脱硝装置（例えば還元剤としてアンモニアを用いる脱硝装置）を付設することが好ましい。

10 印加電圧は、いわゆる空間放電に必要な電界強度×電極間隔であり、一対の電極の間の電界強度が  $0.5 \sim 50 \text{ KV/cm}$  になるように設定される。ただし、放電量、紫外発光量などの調整を目的として、上記値以上または以下の電圧を用いることもできる。印加電圧の下限はプラズマ放電可能の電圧で、充填半導体粒子の種類、粒子形状、充填状態さらには  
15 雰囲気ガスの組成、温度などによって変化する。また、印加電圧の上限値はアーク放電の開始値であり、主に印加電圧の周波数によって変化する。

紫外光の波長は電極間に充填される半導体触媒粒子および  
20 雰囲気ガスの組成によって定まる。半導体触媒をアナターゼチタニアとし、雰囲気を空気とした場合、紫外光の波長は  $300 \sim 350 \text{ nm}$  であり、この範囲はチタニア系光触媒に望ましい波長帯である。

紫外光の発光効率は半導体触媒粒子の粒径に関係し、放電  
25 工程で紫外光の波長の1倍以上の粒子間空隙の頻度が高いと発光効率が高まると考えられるが、現在のところ明確でない。粒子間空隙が過度に広いと放電はいわゆる空間放電となり、発光効率、波長などは雰囲気ガスに大きく影響されると考え



られ、紫外光の制御という意味において好ましくない。

プラズマ放電が継続している半導体触媒粒子充填床は強い酸化触媒活性を示し、200℃以下の低温で充填床内を流通する無機化合物および有機化合物の殆どを酸化する。

5      たとえば  $10 \text{ ng/m}^3$  以下の微量のダイオキシン類（４クロロ・ダイオキシンなど）を含む空気を上記半導体触媒粒子充填床を流通させれば 150℃でほぼ完全にダイオキシンを酸化分解できる。

また、100 ppm以下のNOを含む空気を半導体触媒充  
10    填床に流通させれば、NOをNO<sub>2</sub>に変換できる。変換率は印加電圧並びに周波数によって任意に制御できる。

一般的な化合物の酸化を目的とする場合、半導体触媒としてはチタニアが好適である。このチタニアの結晶をアナターゼとし、光触媒活性を付与すれば、一部で紫外光を発しながら、別の一部で紫外光を吸収し、光触媒としての機能を発揮  
15    させることができ、放電エネルギーを有効に使用できる。

ただし、半導体触媒としては目的反応によって最適なものを選定することができ、半導体触媒もチタニアに限定されるものではない。

20    さらに、 $1 \text{ ng/m}^3$  以下の極微量のダイオキシンを酸化する場合には、半導体触媒を遷移金属、アルカリ金属、アルカリ土類金属またはそれらの酸化物などで修飾し、ダイオキシン類の吸着性を付加したものをを用いることが有効である。

半導体触媒粒子充填床にガス中のダストが堆積すると放電  
25    状態が変化するので、第3の発明によるダイオキシン類分解装置の上流にはバグフィルター等の除塵装置を設置することが望ましい。

第1および第2の発明によれば、例えば、ゴミ焼却炉、各種ボイラー、ディーゼル機関等の排ガスの浄化のための触媒反応に好適に使用される、新規構造の放電電極付き触媒または触媒担体を提供することができる。

- 5 第2の発明による構造の触媒を使用すれば、電極付き触媒で発生した紫外線は通常の光触媒の活性化に有効に作用する。また、光触媒は電極付き触媒どうしに必要な間隙を設けるためのスペイサーの役割も果たす。

- 10 第3の発明によれば、一对の電極間に電圧を印加して触媒粒子間にプラズマ放電を発生させ、触媒粒子粒子表面或いはその近傍から均等に紫外線を発生させ、これをもって光触媒活性を発現させ、排ガス中のダイオキシン類をコンパクトな反応器で高い分解率で分解することができる。

15 図面の簡単な説明

図1は、櫛歯形電極パターンの例を示す平面図である。

図2は、板状触媒の表裏両面に櫛歯形電極を設置した形態を示す裏表透視図である。

図3は、放電電極付き触媒の例を示す平面図である。

- 20 図4は、反応温度とNO酸化率の関係を示すグラフである。

図5は、反応温度とo-クロロトルエン分解率の関係を示すグラフである。

図6(a)は放電電極付き触媒ブロックの平面図、図6(b)はその正面図、図6(c)はその垂直横断面図である。

- 25 図7は電極付き触媒の表面電極どうしの接続状態を示す断面図である。

図8(a)は光触媒用の波板状担体を示す平面図、図8(b)はその側面図である。

図 9 は板状電極付き触媒の表裏両面に櫛歯形電極を設置した形態を示す裏表透視図である。

図 10 (a) は試験用の放電電極付き触媒ブロックを示す正面図、図 10 (b) はその垂直横断面図である。

5 図 11 は反応試験機を示す概略図である。

図 12 は反応温度と NO 酸化反応率の関係を示すグラフである。

図 13 は反応温度と o-クロロトルエン分解反応率の関係を  
示すグラフである。

10 図 14 は、板状触媒の表裏両面に櫛歯形電極を設置した形態を示す裏表透視図である。

図 15 は放電電極付き触媒ブロックの斜視図である。

図 16 は放電電力と酸化率の関係を示すグラフである。

図 17 は放電電力と酸化率の関係を示すグラフである。

15 図 18 は濃度と酸化率の関係を示すグラフである。

図 19 は放電電力と酸化率の関係を示すグラフである。

図 20 は放電電力と酸化率の関係を示すグラフである。

図 21 (a) はプラズマ放電分解反応装置を示す一部切欠  
正面図、図 21 (b) は図 21 (a) の b-b 線に沿う断面  
20 図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

つぎに、実施例により本発明はを具体的に説明する。実施  
例 1 ~ 3 は第 1 の発明に、実施例 4 ~ 8 は第 2 の発明に、そ  
25 して実施例 9 は第 3 の発明にそれぞれ対応する。

##### 実施例 1

触媒物質としてチタニアを含む光触媒シート（日本無機社  
製）の表面に、銀を含むペースト状導電性インキ（ノリタケ

カンパニーリミテッド社製)を図1に示すパターンでスクリーン印刷した。この印刷ペーストを空气中で150℃で1時間加熱して硬化させた。こうして光触媒シートの表面に櫛歯形の表面電極(2)を形成した。

- 5 次いで、同シートの裏面に、上記銀ペーストを、表面電極と同じパターンでかつその各櫛歯が表面電極の櫛歯とは逆を向くと共に表面電極の櫛歯間のちょうど中央に位置するように、スクリーン印刷し、上記と同じ条件で硬化させた。こうして光触媒シートの裏面に櫛歯形の裏面電極(3)を形成した。
- 10 得られた、表裏両面に放電電極を備えた触媒の表裏透視図を図2に示す。

#### 実施例2

- 実施例1で得た放電電極付き触媒の各電極端子に15KVの交流電圧を60Hzで印加し、触媒全面から紫外線(波長:
- 15 300~400nm)が放射されることを確認した。

#### 実施例3

- 実施例1で得た放電電極付き触媒を切断し、図3に示す板状触媒(1)を得た。これをテフロン製メッシュで挟んで10mm×20mmのガス流路断面を持つ石英ガラス製反応管に
- 20 充填した。反応管は、加熱ヒーターで覆われており、外部からの紫外光入射は無い。次いで、100ppmのNOを含む空気からなる調製排ガスを流量2.5リットル/分で反応管に通し、交流電圧10KVを60Hzで印加し、反応温度100~200℃で、NOの酸化性能を化学発光法によって測
- 25 定し、下記式[I]により酸化率を求めた。

酸化率(%) =

(入り口濃度 - 出口濃度) / 入り口濃度 × 100 ... [I]

また、NO含有空気からなる調製排ガスを、100ppmのo-クロロトルエン（これはダイオキシン類の代替え物質として一般に知られている）を含む空気からなる調製排ガスに代えた以外、上記と同様にしてo-クロロトルエンの酸化分解性を水素炎分解ガスクロマトグラフ法によって測定し、上記式〔I〕により酸化分解率を求めた。

得られた結果を表1、図4および図5に示す。これらから明らかなように、板状触媒(1)は放電効果により高いNO酸化性およびo-クロロトルエン分解性を示す。

表 1

| 反応温度 (°C) | NO酸化率 (%) |      | o-クロロトルエン分解率 (%) |      |
|-----------|-----------|------|------------------|------|
|           | 放電なし      | 放電あり | 放電なし             | 放電あり |
| 100       | 8         | 76   | 0                | 75   |
| 130       | 12        | 81   | 9                | 82   |
| 160       | 15        | 85   | 18               | 85   |
| 200       | 18        | 88   | 31               | 90   |

#### 実施例 4

日本無機社製セラミックペーパー（MCS-05：厚さ0.5mm）に石原産業社製チタニアゾル（CSN-30：固形分濃度32wt%）を含浸させ、次いでこれを120℃で乾燥しさらに空气中450℃で5時間焼成して、チタニア分を140g/m<sup>2</sup>保持した120mm×55mmのチタニア含浸平板を製作した。

また、日本無機社製セラミックスペーパー（MCS-025：厚さ0.25mm）を上記と同様のチタニアゾルに浸漬し、同ペーパーを湿潤状態でアルミニウム製の波形の型板に張り付け、そのまま120℃で乾燥し、乾燥品を型板から剥  
5 して450℃、5時間焼成し、図8に示すような、チタニア分70g/m<sup>2</sup>を保有する100mm×55mmのチタニア含浸波板を製作した。

これら平板および波板を3%硝酸水溶液にそれぞれ14時間浸漬した後、流水中で10時間洗浄し、次いで120℃乾  
10 燥して、平板状担体および波板状担体を得た。

さらに、これら担体を、石原産業社製チタニアゾル（STS-01：固形分33wt%）を純水で3倍に希釈した液に浸漬し、120℃で乾燥し、空气中300℃で1時間、450℃で1時間および520℃で1時間それぞれ焼成し、光触  
15 媒活性を有する平板状触媒および波板状触媒を得た。

次に、上記平板状触媒(11)の表面に、銀を含むペースト状導電性インキ（日本アチソン社製、SS-24807）を図9に示すパターンでスクリーン印刷した。この印刷ペーストを空气中で150℃で1時間加熱して硬化させた。こうして  
20 平板状触媒の表面に櫛歯形の表面電極(12)を形成した。その後、同触媒の裏面に、上記銀ペーストを、表面電極と同じパターンでかつその各櫛歯が表面電極の櫛歯とは逆を向くと共に表面電極の櫛歯間のちょうど中央に位置するように、スクリーン印刷し、上記と同じ条件で硬化させた。こうして平板  
25 状触媒の裏面に櫛歯形の裏面電極(13)を形成した。得られた電極付き平板状触媒(14)の表裏透視図を図9に示す。

次いで、図6に示すように、複数枚の平板状電極付き触媒(14)と、複数枚の上記波板状光触媒(15)とを交互に重合せ、

これらを囲い枠(16)で束ねた。囲い枠(16)は、厚さ 1 mm のセラミックスペーパーをシリカコロイドで固めたものである。これらの平板状電極付き触媒(14)のガス流れ方向の両端部は、波板状光触媒(15)より突出している。一方の突出端にて楕形の表面電極(12)の各背部分どうしが 3 本の電極接続シャフト(18)を介してそれぞれ接続されている。すなわち、図 7 に示すように、平板状電極付き触媒(14)の一端部が導電性の接続部材(19)の周側部凹所に強制嵌込まれ、接続部材(19)の中央貫通孔(20)に電極接続シャフト(18)が通され、隣接する接続部材(19)の間にコイル状の導電スプリング(21)が接続部材(19)に接触状に介在されている。平板状電極付き触媒(14)の他方の突出端でも上記と同様に楕形の裏面電極(13)の各背部分どうしが 3 本の電極接続シャフト(18)を介してそれぞれ接続されている。

15      こうして放電電極を備えた触媒ブロックを製作した。

また、図 10 に示すように、上記平板状電極付き触媒(14) 2 枚と、上記波板状光触媒(15) 3 枚を交互に重合せ、これらを囲い枠(16)で束ね、試験用の放電電極付き触媒ブロックを製作した。両外側の波板状光触媒(15)と囲い枠(16)との間の  
20      スペースに石英ウール(17)を高密度に詰め、この部分に調製排ガスが流れないようにした。また、上記と同様に、波板状光触媒の突出端にて表面電極どうしおよび裏面電極どうしを電極接続シャフト(18)を介して接続した。

この試験用触媒ブロックを図 11 に示す反応試験機(22)の  
25      反応管(23)に充填した。反応試験機(22)は、ステンレス鋼製の反応管(23)と、その一端のガス導入室(24)と、他端のガス排出室(25)と、これらを収める恒温室(26)とからなる。平板状電極付き触媒の一方の端部の電極すなわち表面電極と、他

方の端部の電極すなわち裏面電極とを交流電源(27)にそれぞれ接続した。反応管(23)壁と試験用触媒ブロックの囲い枠との間のスペースは厚さ3mmのセラミックスシートでシールした。

- 5 次いで、100ppmのNOを含む空気からなる調製排ガスを流量1.9Nm<sup>3</sup>/時で反応試験機(22)に通し、交流電圧10KVを60Hzで印加し、反応温度100～200℃で、NOの酸化性能(酸化率)を化学発光法によって測定した。
- 10 また、NO含有空気からなる調製排ガスを、100ppmのo-クロロトルエンを含む空気からなる調製排ガスに代えた以外、上記と同様にしてo-クロロトルエンの酸化分解性(分解率)を水素炎分解ガスクロマトグラフ法によって計測した。
- 15 得られた結果を表2、図12および図13に示す。これらから明らかなように、上記触媒ブロックは放電効果により高いNO酸化性およびo-クロロトルエン酸化分解性を示した。

表 2

20

| 反応温度(℃) | NO酸化率(%) |      | o-クロロトルエン分解率(%) |      |
|---------|----------|------|-----------------|------|
|         | 放電なし     | 放電あり | 放電なし            | 放電あり |
| 100     | 3        | 79   | 2               | 78   |
| 130     | 7        | 81   | 7               | 83   |
| 160     | 11       | 84   | 12              | 85   |
| 200     | 14       | 85   | 16              | 85   |

25



## 実施例 5

日本無機社製セラミックペーパー (M C S 0 5 0 : 5 0 m m × 5 0 m m、厚さ 0 . 5 m m) を、チタンイソプロポキシドを加水分解して得たゲルに塩酸を加え開膠して得たチタニアコロイドに浸漬し、次いでこれを 1 2 0 °C で乾燥しさらに  
5 空气中 4 5 0 °C で 5 時間焼成して、チタニア光触媒を 2 5 g / m<sup>2</sup> 保持した平板 (A) を製作した。

次に、上記触媒平板 (A) の表裏両面に、銀を含むペースト状導電性インキ (日本アチソン社製、S S - 2 4 8 0 7) を  
10 用いて実施例 4 と同様の操作で、櫛歯形の表面電極 (32) と裏面電極 (33) を形成した。得られた電極付き光触媒平板 (31) の表裏透視図を図 1 4 に示す。

この光触媒平板 (31) を反応試験機の反応管に充填した。反応試験機は、反応管を 5 0 m m × 1 7 m m の流路断面を有する  
15 アクリル樹脂製反応管に代えた以外は実施例 4 のものと同じである。次いで、1 5 0 p p m の N O と 4 0 p p m の o - クロロトルエンを含む湿分飽和空気からなる調製排ガスを室温で流量 2 . 5 リットル / 分で反応試験機に通し、放電条件を変えて、周波数 1 0 0 0 H z (正弦波) の交流電圧を印加  
20 し、N O の酸化率を化学発光法によって測定し、o - クロロトルエンの酸化率を水素炎分解ガスクロマトグラフ法によって計測し、実施例 3 の式 [I] により酸化率を求めた。

得られた結果を表 3 および図 1 6 に示す。これらから、放電によって触媒が励起され、N O の酸化および o - クロロトル  
25 エンの酸化分解が生じることが分かる。

表 3

| 実験<br>番号 | 電圧   | 平均<br>電流 | 入 口       |                        |             | 出 口       |                        |             | 酸化率 (%) |      |
|----------|------|----------|-----------|------------------------|-------------|-----------|------------------------|-------------|---------|------|
|          | K v  | $\mu$ A  | NO<br>ppm | NO <sub>2</sub><br>ppm | o-CT<br>ppm | NO<br>ppm | NO <sub>2</sub><br>ppm | o-CT<br>ppm | NO      | o-CT |
| 5 1      | 0.0  | 0.0      | 152.0     | 2.0                    | 43          | 149.2     | 4.3                    | 44.0        | 1.8     | 0.0  |
| 2        | 5.0  | 1.1      | 145.0     | 3.1                    | 38          | 139.5     | 7.5                    | 38.0        | 3.8     | 0.0  |
| 3        | 6.0  | 6.2      | 148.0     | 1.5                    | 38          | 125.5     | 16.5                   | 32.0        | 15.2    | 15.8 |
| 4        | 7.0  | 6.7      | 150.0     | 2.5                    | 42          | 63.1      | 84.2                   | 25.0        | 57.9    | 40.5 |
| 5        | 8.0  | 7.4      | 141.0     | 2.6                    | 37          | 22.8      | 118.0                  | 10.0        | 83.8    | 73.0 |
| 6        | 9.0  | 8.0      | 151.0     | 2.1                    | 40          | 10.7      | 138.9                  | 4.1         | 92.9    | 89.8 |
| 7        | 10.0 | 8.6      | 149.0     | 2.8                    | 40          | 1.3       | 141.0                  | 1.1         | 99.1    | 97.3 |

o-CT: オルトクロロトルエン

10

## 実施例 6

実施例 5 で用いたセラミックスペーパーを実施例 5 で用いたチタニアコロイド溶液に浸漬し、同ペーパーを湿润状態でアルミニウム製の波形の型板に張り付け、そのまま 120℃で乾燥し、乾燥品を型板から剥して 450℃、5 時間焼成し、図 15 に示すような、チタニア分 25 g/m<sup>2</sup> を保有する 50 mm × 50 mm のチタニア含浸波板 (34) を製作した。

20 上記平板 (31) 1 枚を波板 (34) 2 枚で挟み、図 15 に示す放電電極を備えたサンドイッチ状の放電電極付き触媒ブロック (35) を製作した。

この触媒ブロックを反応試験機の反応管に充填し、実施例 5 と同様の操作で NO の酸化率および o-クロロトルエンの酸化率を計測した。

得られた結果を表 4 および図 17 に示す。これらから、放電によって発生する紫外光により、波板状の光触媒も励起され、NO の酸化率および o-クロロトルエンの酸化率が上昇

することが分かる。

表 4

| 5<br>実験<br>番号 | 電圧   | 平均<br>電流 | 入 口       |                        |             | 出 口       |                        |             | 酸化率 (%) |      |
|---------------|------|----------|-----------|------------------------|-------------|-----------|------------------------|-------------|---------|------|
|               | Kv   | $\mu$ A  | NO<br>ppm | NO <sub>2</sub><br>ppm | o-CT<br>ppm | NO<br>ppm | NO <sub>2</sub><br>ppm | o-CT<br>ppm | NO      | o-CT |
| 1             | 0.0  | 0.0      | 153.0     | 1.8                    | 45          | 152       | 1.9                    | 44.0        | 0.7     | 0.0  |
| 2             | 5.0  | 1.2      | 150.0     | 2.2                    | 39          | 138       | 7.5                    | 37.6        | 8.0     | 3.6  |
| 3             | 6.0  | 6.3      | 149.0     | 2.0                    | 40          | 100.2     | 16.5                   | 28.5        | 32.8    | 28.8 |
| 4             | 7.0  | 6.7      | 148.0     | 2.1                    | 42          | 59.5      | 84.2                   | 19.8        | 59.8    | 52.9 |
| 5             | 8.0  | 7.3      | 148.0     | 2.6                    | 40          | 18.5      | 118.0                  | 7.4         | 87.5    | 81.5 |
| 10<br>6       | 9.0  | 8.1      | 150.0     | 1.8                    | 39          | 8.1       | 138.9                  | 3.7         | 94.6    | 90.5 |
| 7             | 10.0 | 8.8      | 148.0     | 2.3                    | 40          | 0.5       | 141.0                  | 0.8         | 99.7    | 98.0 |

o-CT: オルトクロロトルエン

## 15 実施例 7

実施例 5 において、調製排ガス中の NO および o-クロロトルエンの濃度を変更し、その他の点は実施例 5 と同様の操作を行って、酸化率の変化を調べた。

結果を表 5 および図 18 に示す。放電条件を一定とした場合、通常の間隙放電（低温プラズマ放電）では酸化率がほぼ一定であるのに対し、この実施例では被酸化物濃度の低下に従い、酸化率が上昇することがわかる。

25

表 5

| 実験<br>番号 | 電圧  | 平均<br>電流 | 入 口       |                        |             | 出 口       |                        |             | 酸化率 (%) |      |
|----------|-----|----------|-----------|------------------------|-------------|-----------|------------------------|-------------|---------|------|
|          | Kv  | $\mu$ A  | NO<br>ppm | NO <sub>2</sub><br>ppm | o-CT<br>ppm | NO<br>ppm | NO <sub>2</sub><br>ppm | o-CT<br>ppm | NO      | o-CT |
| 5 1      | 7.0 | 6.6      | 148.0     | 2.1                    | 42          | 62.1      | 86.8                   | 25.0        | 58.0    | 40.5 |
| 2        | 7.0 | 6.6      | 72.6      | 1.8                    | 42          | 27.6      | 40.7                   | 24.3        | 62.0    | 42.1 |
| 3        | 7.0 | 6.6      | 30.1      | 0.8                    | 42          | 8.7       | 22.8                   | 24.1        | 71.1    | 42.6 |
| 4        | 7.0 | 6.6      | 30.3      | 2.1                    | 30          | 8.6       | 22.5                   | 13.6        | 71.6    | 54.7 |
| 5        | 7.0 | 6.6      | 29.8      | 2.6                    | 15          | 8.5       | 22.5                   | 5.5         | 71.5    | 63.3 |
| 6        | 7.0 | 6.6      | 29.5      | 1.8                    | 7           | 8.5       | 22.5                   | 2.1         | 71.2    | 70.0 |

o-CT: オルトクロロトルエン

10

## 実施例 8

実施例 5 で得られたチタニア光触媒保持平板(31)に、常法  
 15 の浸漬法により各種金属酸化物を含浸担持し、金属担持触媒  
 を調製した。同触媒について実施例 5 と同様の操作で NO お  
 よび o-クロロトルエンの酸化率を調べた。

調整した触媒諸元と酸化率を表 6、図 19 および図 20 に  
 示す。これらから、担持金属によって、放電電圧に対する電  
 20 流値が異なり、酸化率も変化するが、放電電力に対する酸化  
 率は大きくは変動しないことが分かる。

25

表 6

| 実験番号 | 担持金属 | 含浸濃度  | 放電電圧 | 平均電流    | 放電電力 | NO酸化率 | o-CT酸化率 |
|------|------|-------|------|---------|------|-------|---------|
|      |      | mol/l | Kv   | $\mu$ A | mW   | %     | %       |
| 1    | —    | —     | 7    | 6.7     | 46.9 | 58.1  | 39.5    |
| 2    | Mn   | 0.1   | 7    | 7.1     | 49.7 | 63.2  | 45.1    |
| 3    |      | 0.1   | 8    | 9.5     | 76.0 | 92.1  | 90.8    |
| 4    | Fe   | 0.1   | 7    | 7.8     | 54.6 | 88.0  | 86.5    |
| 5    |      | 0.1   | 8    | 11.2    | 89.6 | 99.0  | 97.8    |
| 6    |      | 0.2   | 7    | 8.5     | 59.5 | 84.2  | 82.3    |
| 7    | Mo   | 0.1   | 7    | 7.8     | 54.6 | 79.9  | 75.1    |
| 8    | Sn   | 0.1*  | 7    | 6.6     | 46.2 | 66.3  | 64.1    |

\*メタノール溶液

o-CT: オルトクロロトルエン

## 実施例 9

図 2 1 において、80×9mmの矩形流路断面を有する石英ガラス製反応管(41)の内部にステンレス金網(SUS304、30メッシュ、線径0.2mm、大きさ160×80×0.5mm)からなる一対の電極(42)(43)を対向状に設置した。電極間の間隔は8mmであった。電極間の間隔に直径1mmのチタニア光触媒球形粒子を充填して触媒充填床(44)を形成した、電源(45)により両電極間に20KVの電圧を200Hzで断続的に印加した。触媒充填床(44)全体から紫外線の発光が認められた。

反応管(41)に、100ppmのNOを含む空気を流量1m<sup>3</sup>/secで150℃で通じ、NOのNO<sub>2</sub>への酸化率を計測した。断続周波数を変化させて平均放電電流を変化させ、平均放電電流とNOの酸化率(実施例3の式[I]により求めた)との関係を求めた。この結果を表7に示す。

表 7

| 平均電流 ( $\mu$ A) | NO酸化率 (%) |
|-----------------|-----------|
| 11.5            | 92        |
| 10.0            | 81        |
| 7.0             | 58        |
| 4.0             | 33        |
| 1.0             | 9         |

#### 10 産業上の利用可能性

本発明は、ゴミ焼却炉、各種ボイラー、ディーゼル機関等から出る排ガス中のダイオキシン類などの有害物質をプラズマ放電によって分解する方法および装置に関する。本発明は、さらに、放電電極を備えた触媒または触媒用の担体に関し、また、放電電極を備えた触媒または触媒用の担体と、これらの間および／または外側に配された光触媒とからなる、放電電極を備えた触媒ブロックに関する。

## 請求の範囲

1. 板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、点状または、交差していてもよい線状もしくは棒状の電極を備えた放電電極付き触媒または担体。

2. 電極が、板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、導電性印刷インキをプリントするか、金属粉末を焼結させるか、または金属を蒸着あるいはスパッタリングすることによって形成したものである、請求項 1 記載の放電電極付き触媒または担体。

3. 電極が櫛歯形である、請求項 1 または 2 記載の放電電極付き触媒または担体。

4. 櫛歯形の電極が、触媒または担体の表裏両面に、裏面電極の各櫛歯が表面電極の各櫛歯とは逆を向くと共に表面電極の各櫛歯の間にそれぞれ位置するように、形成されている、請求項 3 記載の放電電極付き触媒または担体。

5. 触媒が、セラミック繊維で構成される板状またはシート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセラミック繊維間に、触媒物質またはこれを担持した多孔質担体粒子を分散保持させたものである、請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の放電電極付き触媒。

6. 担体が、セラミック繊維で構成される板状またはシート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセラミック繊維間に、多孔質担体粒子を分散保持させたものである、請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の放電電極付き担体。

7. 少なくとも片面に、点状または、交差していてもよい線状もしくは棒状の電極を備えた板状またはシート状の複数の電極付き触媒または担体と、これら電極付き触媒ま

たは担体の間および／または外側に配された光触媒とからなる、放電電極付き触媒ブロック。

8. 電極付き触媒および／または光触媒が、セラミック繊維で構成される板状またはシート状のプレフォーム体  
5 からなるマトリックスのセラミック繊維間に、触媒物質またはこれを担持した多孔質担体粒子を分散保持させたものである、請求項 7 記載の放電電極付き触媒ブロック。

9. 電極が、板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、導電性印刷インキをプリントするか、  
10 金属粉末を焼結させるか、または金属を蒸着あるいはスパッタリングすることによって形成したものである、請求項 7 または 8 記載の放電電極付き触媒ブロック。

10. 電極が櫛歯形である、請求項 7 ～ 9 のいずれかに記載の放電電極付き触媒ブロック。

15 11. 櫛歯形の電極が、板状またはシート状の触媒または担体の表裏両面に、裏面電極の各櫛歯が表面電極の各櫛歯とは逆を向くと共に表面電極の各櫛歯の間にそれぞれ位置するように、形成されている、請求項 10 記載の放電電極付き触媒ブロック。

20 12. 光触媒が、粒状触媒、平板状または波板状である、請求項 7 ～ 11 のいずれかに記載の放電電極付き触媒ブロック。

13. 電極付き触媒または担体が平板状で、光触媒が波板状である、請求項 7 ～ 12 のいずれかに記載の放電電極  
25 付き触媒ブロック。

14. 平板状の電極付き触媒または担体の各端部が波板状の光触媒より突出し、この突出端にて各電極が接続されている、請求項 7 ～ 12 のいずれかに記載の放電電極付き触



媒ブロック。

15. 電極付き触媒または担体の一对の電極間に電極間間隔10mm当たり3～50KVの電圧を0.04～200KHzで印加し、両電極間に触媒または担体を介して放電を起こさせて電極付き触媒または担体を活性化する、請求項1～6のいずれかに記載の放電電極付き触媒または担体、もしくは請求項7～14のいずれかに記載の放電電極付き触媒ブロックの使用方法。

16. 請求項1～6のいずれかに記載の放電電極付き触媒または担体、もしくは請求項7～14のいずれかに記載の放電電極付き触媒ブロックをガス流通経路内に設置して、一对の電極間に電極間間隔10mm当たり3～50KVの電圧を0.04～200KHzで印加し、両電極間に触媒または担体を介して放電を起こさせて電極付き触媒または担体を活性化し、ガス中の対象成分を接触反応させるガスの触媒反応方法。

17. ガスが燃焼排ガスであり、同ガス中のダイオキシン類を酸化・分解し、一酸化窒素を酸化する、請求項16記載の触媒反応方法。

20 18. ガスが有機性臭気成分を含むガスであり、ガス中の臭気成分を酸化・分解する、請求項16記載の触媒反応方法。

25 19. 一对の電極の間に半導体特性を示す粒状触媒を充填し、電極間に電圧を印加して触媒粒子間にプラズマ放電を発生させ、処理すべき排ガスを触媒充填床に流通して排ガス中のダイオキシン類を分解するプラズマ放電によるダイオキシン類分解方法。

20. 触媒が光触媒活性を有する請求項19記載のダ

イオキシシソ類分解方法。

21. 触媒がチタニア系触媒である請求項19記載のダイオキシシソ類分解方法。

22. 触媒がアタナーゼチタニア担体に光触媒活性チ  
5 タニア薄層をコーティングしたものである請求項19記載のダイオキシシソ類分解方法。

23. 電圧を高周波で断続的に印加する請求項19～22のいずれかに記載のダイオキシシソ類分解方法。

24. 電圧を周波数40Hz～10MHzで断続的に  
10 印加する請求項23記載のダイオキシシソ類分解方法。

25. 一对の電極の間の電界強度が0.5～50KV/cmである請求項19～24のいずれかに記載のダイオキシシソ類分解方法。

26. 同時に、排ガス中のNOをNO<sub>2</sub>に変換する請  
15 求項19～25のいずれかに記載のダイオキシシソ類除去方法。

27. 同時に、排ガス中の炭化水素類を二酸化炭素に変換する請求項19～26のいずれかに記載のダイオキシシソ類除去方法。

20 28. 排ガス煙道に設けられた一对の電極と、一对の電極の間に設けられた、半導体特性を示す粒状触媒からなる触媒充填床と、電極間に電圧を印加して触媒粒子間にプラズマ放電を発生させる電源とからなり、プラズマ放電によって紫外線を発生させて光触媒を励起し、触媒充填床を流通する  
25 排ガス中のダイオキシシソ類を分解するプラズマ放電によるダイオキシシソ類分解装置。

29. 排ガス煙道に一对の電極の前流に除塵装置を付設した請求項28記載のダイオキシシソ類分解装置。

30. 排ガス煙道に一对の電極の後流に脱硝装置を付  
設した請求項28または29記載のダイオキシン類分解装置。

5

10

15

20

25



Fig. 1

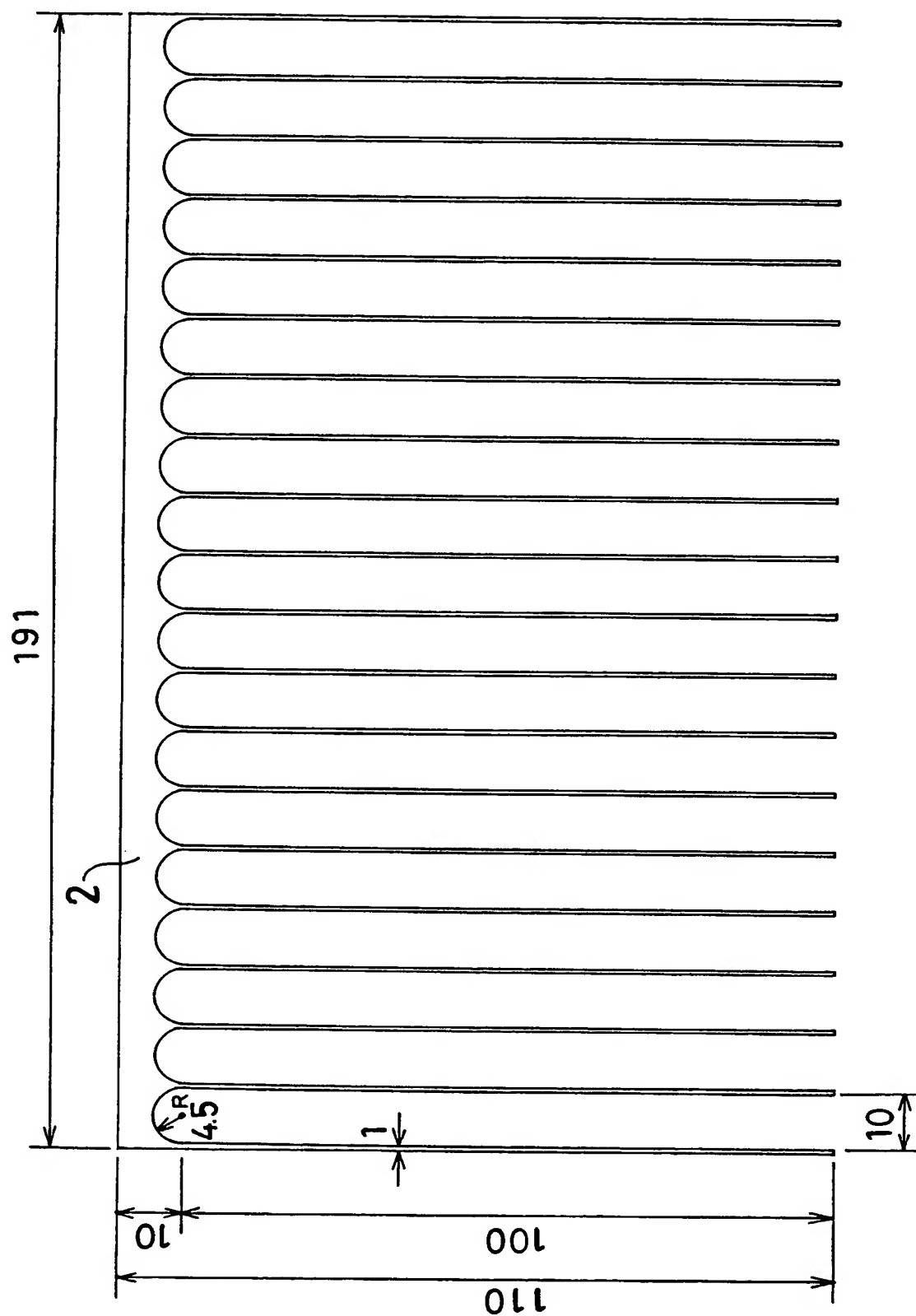




Fig. 2

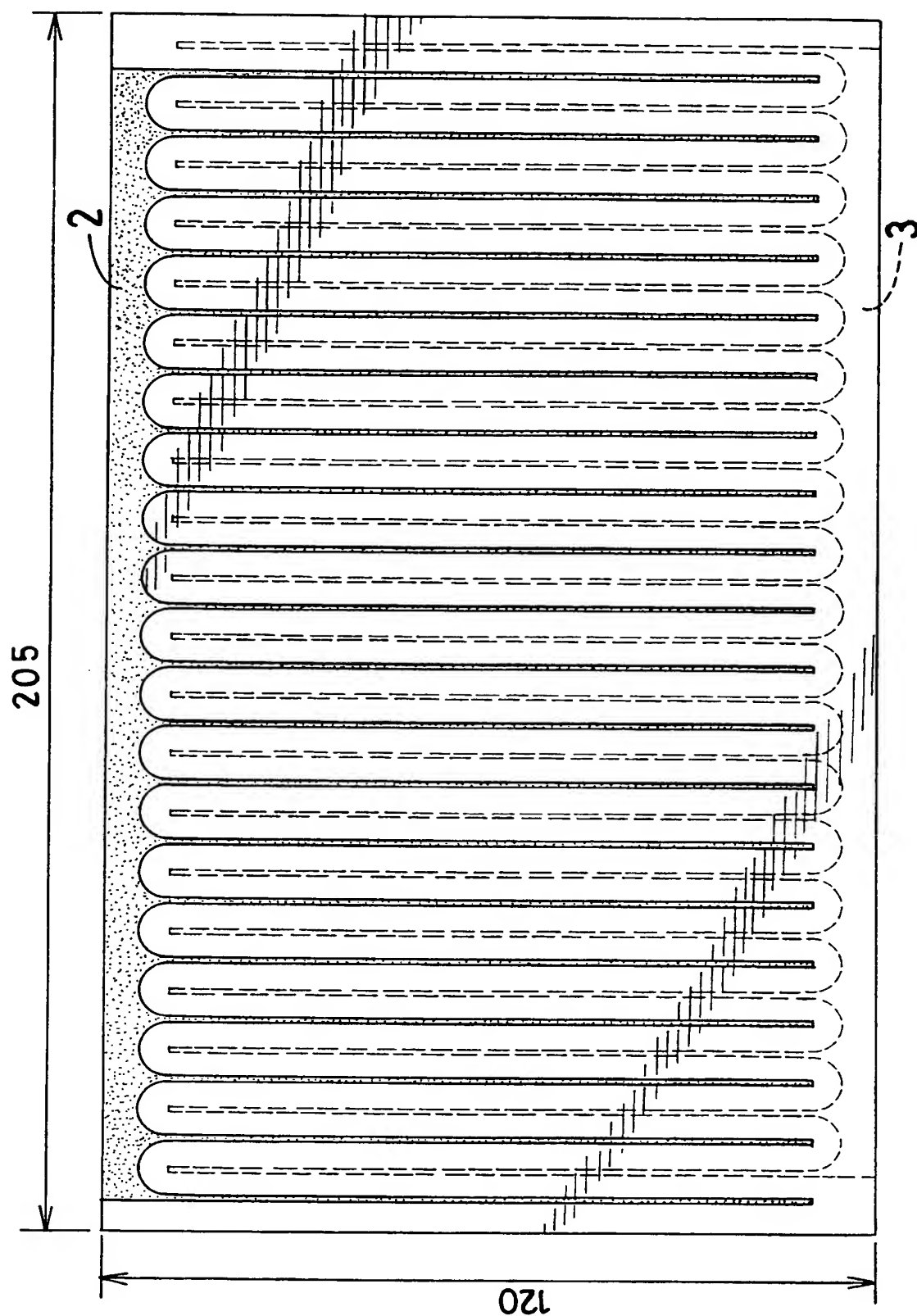






Fig. 3

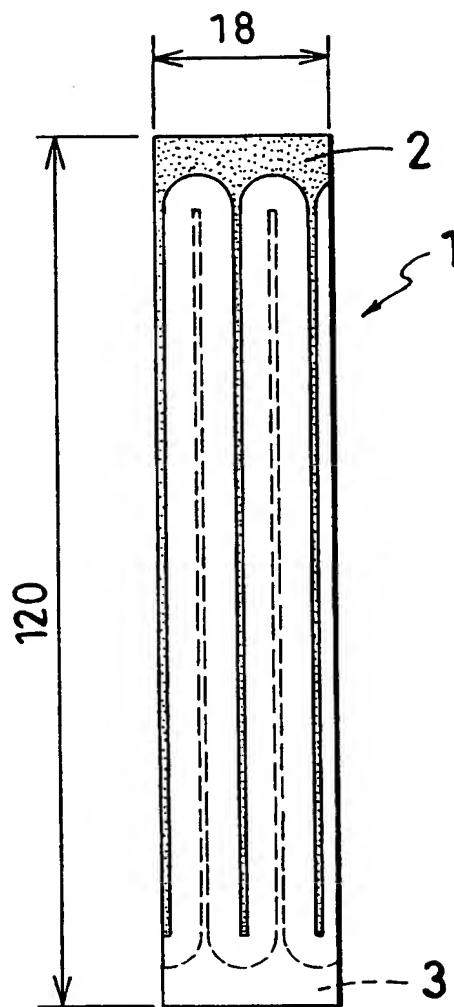




Fig. 4

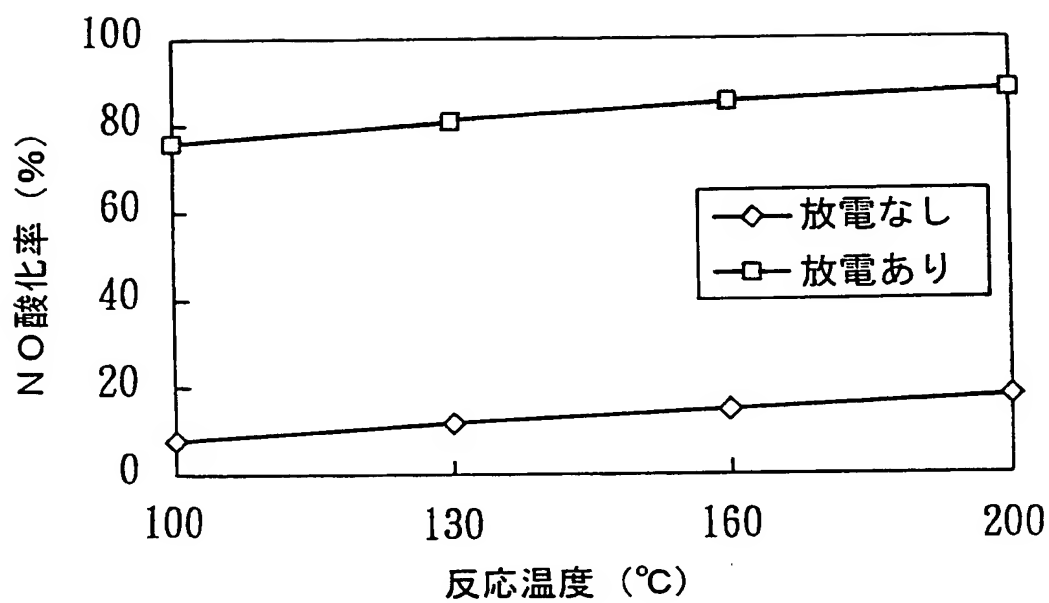


Fig. 5

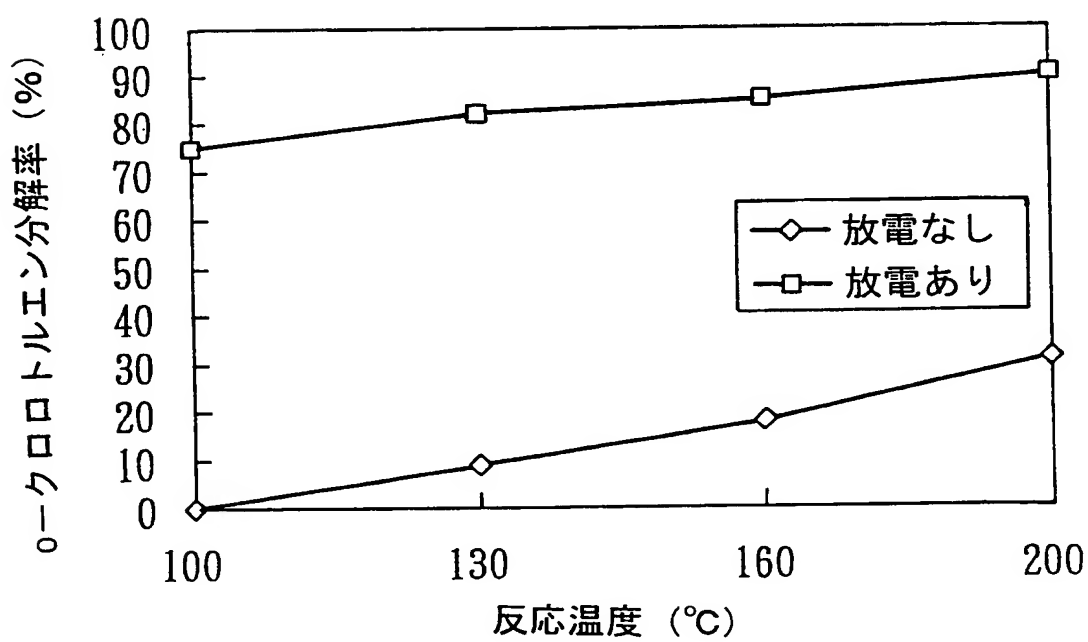




Fig. 6

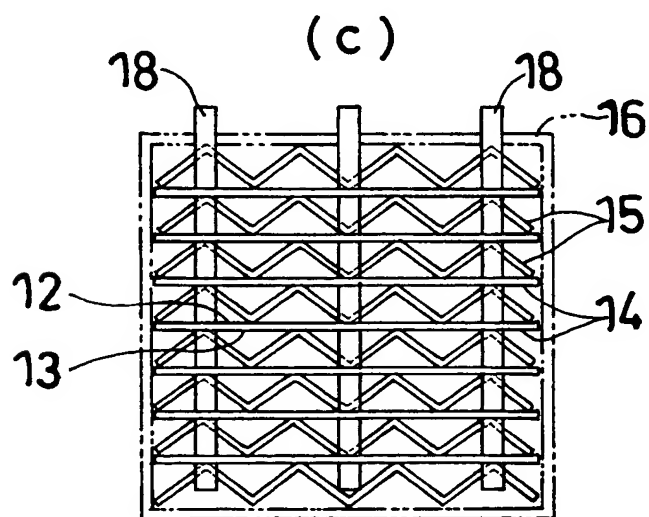
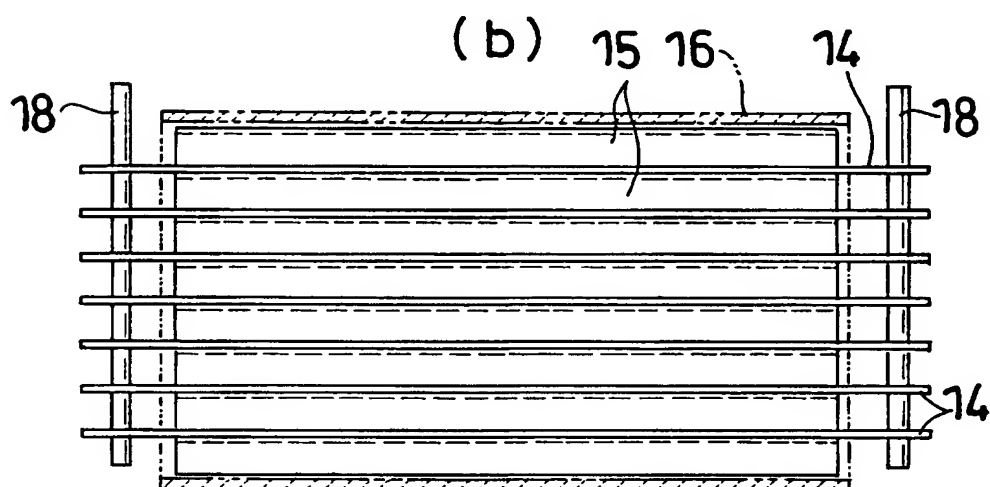
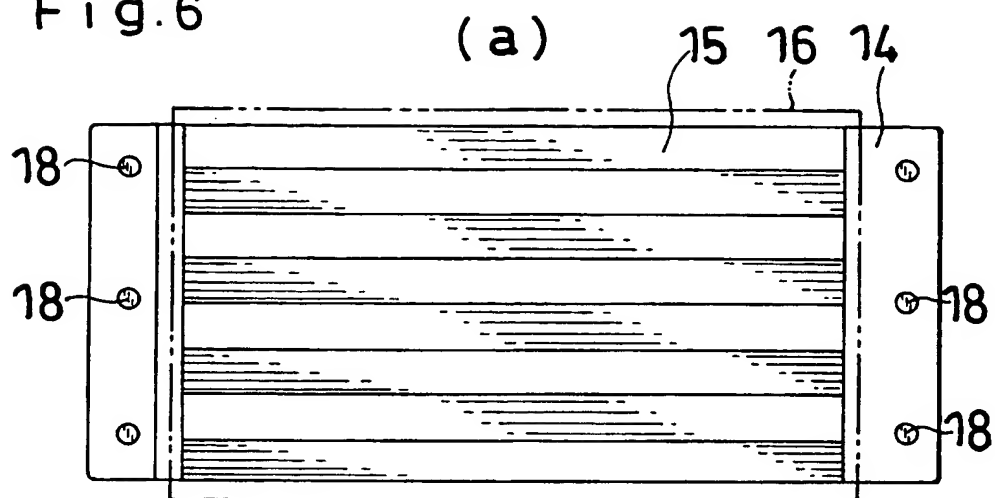






Fig.9

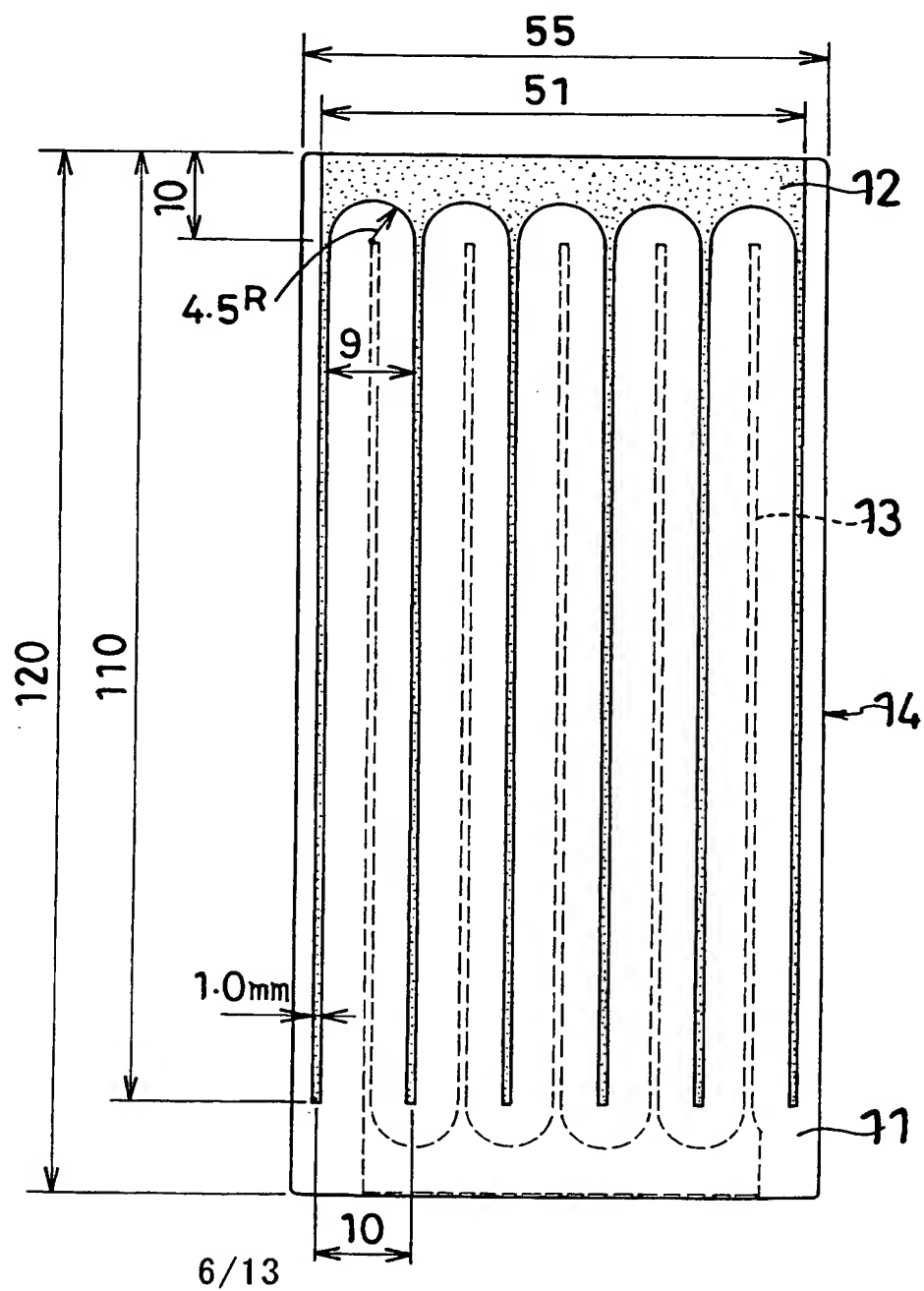
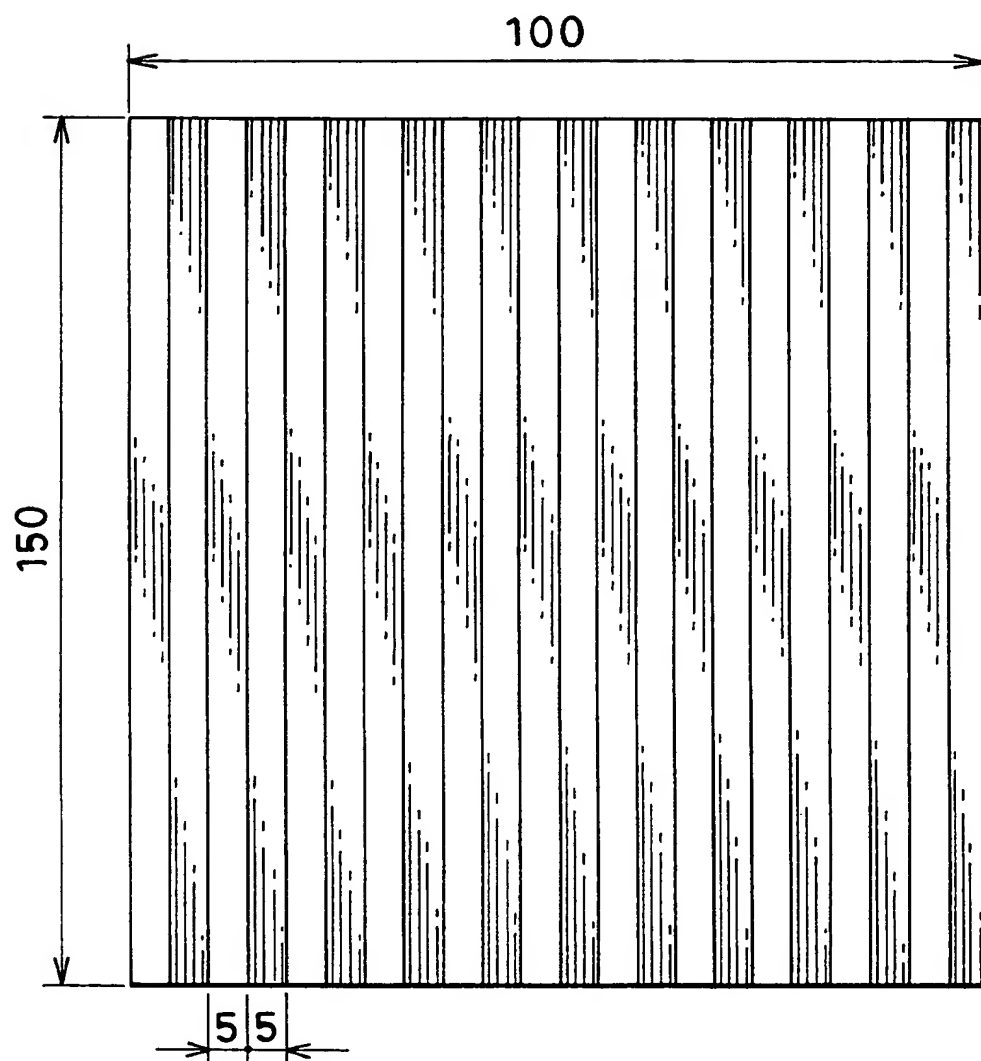






Fig. 8

(a)



(b)

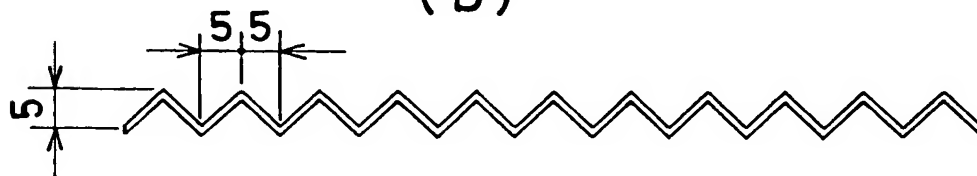
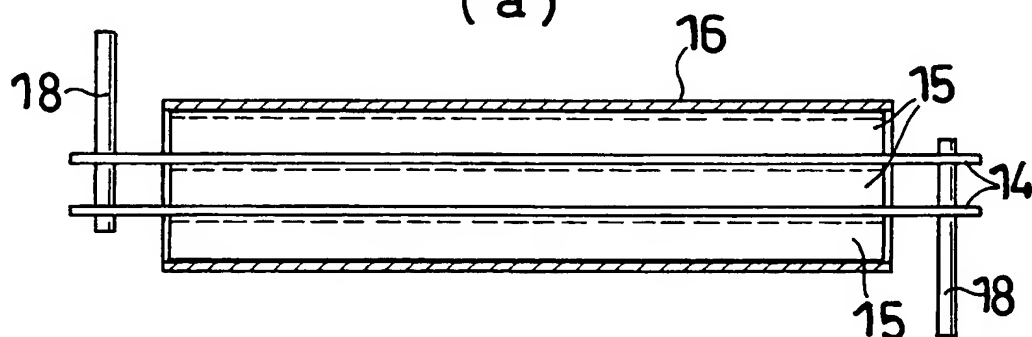




Fig.10

(a)



(b)

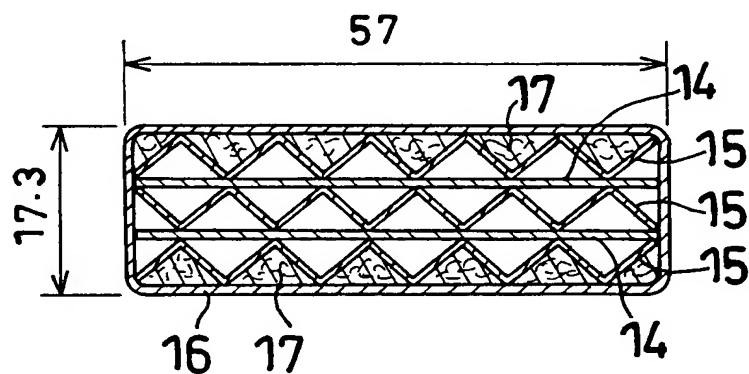


Fig.11

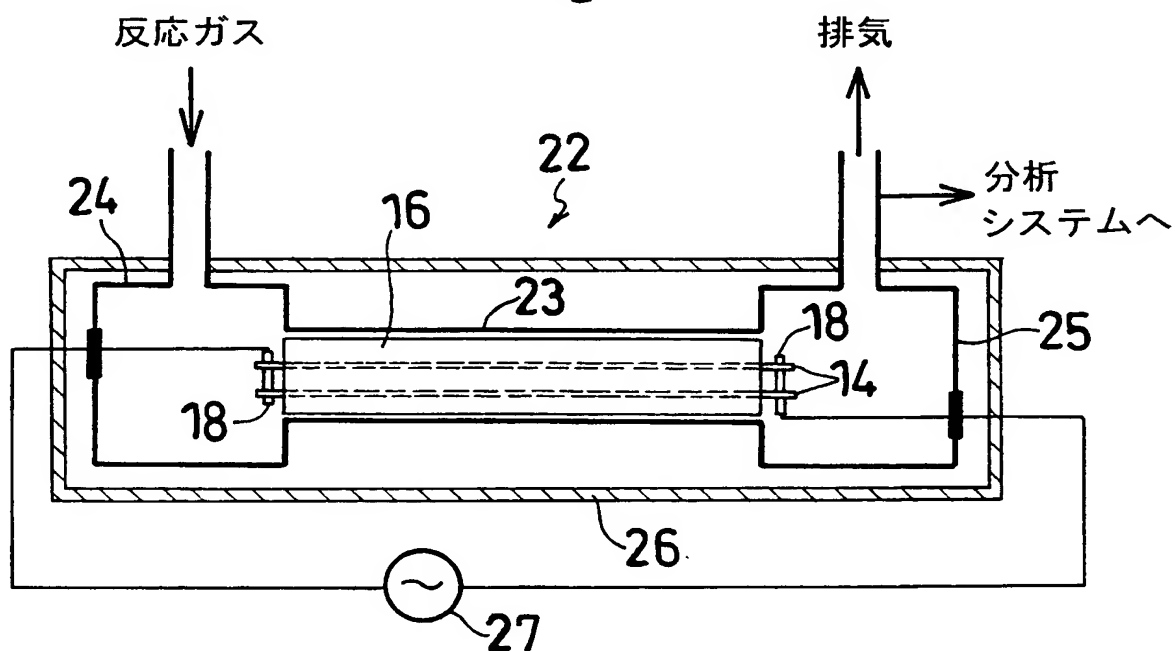




Fig.12

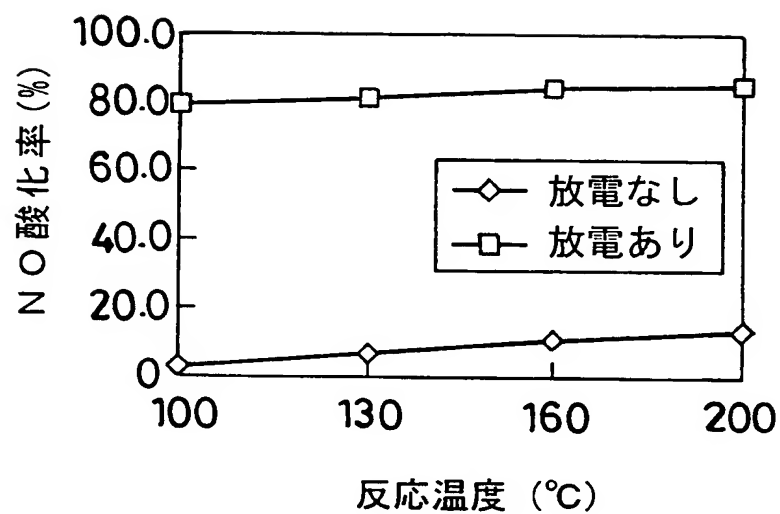


Fig.13

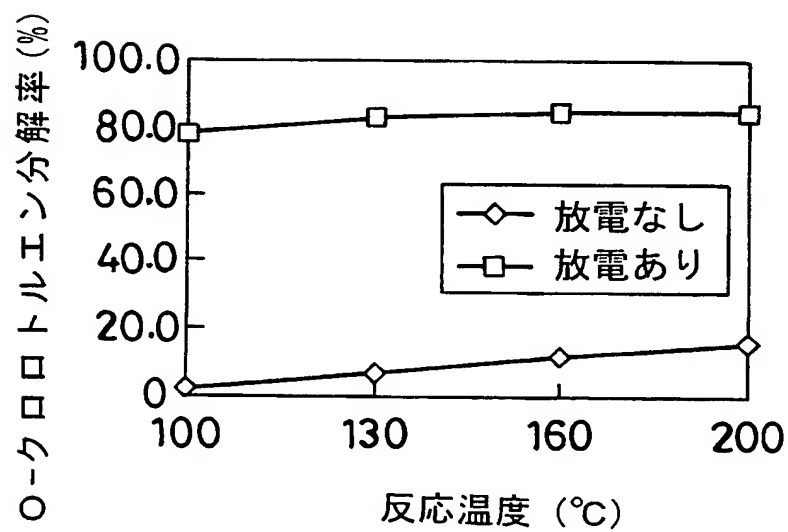




Fig.14

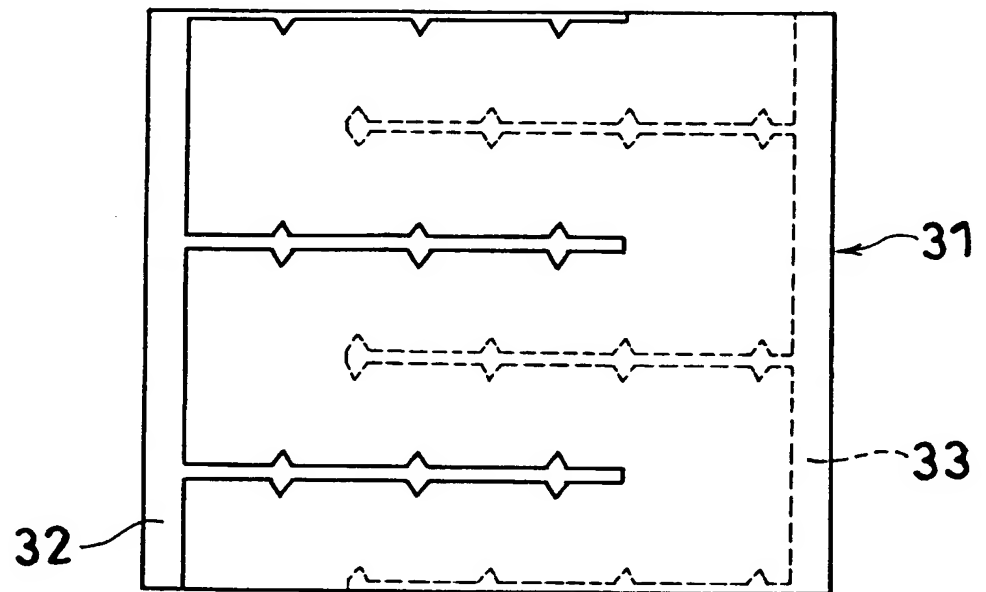


Fig.15

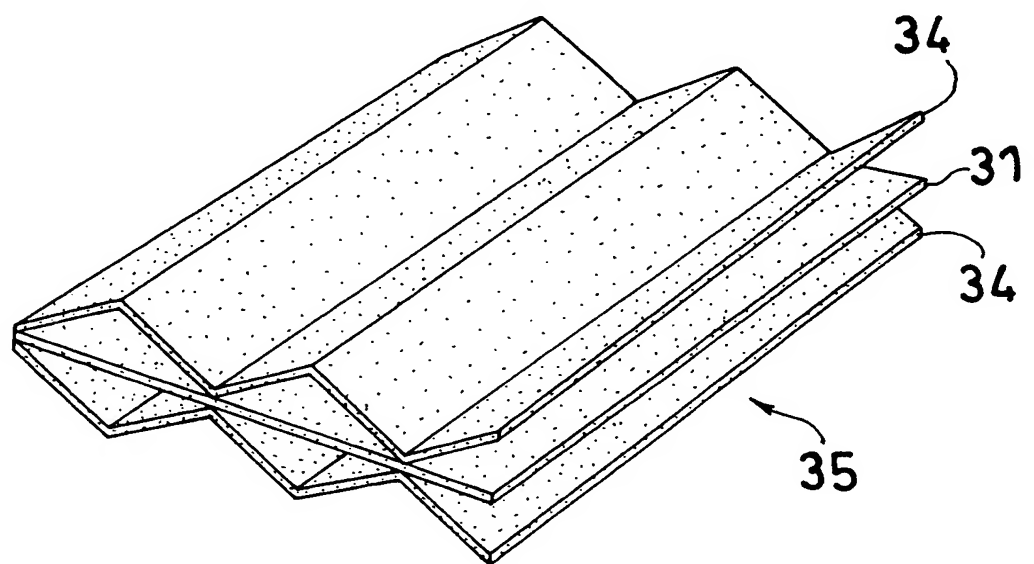






Fig.16

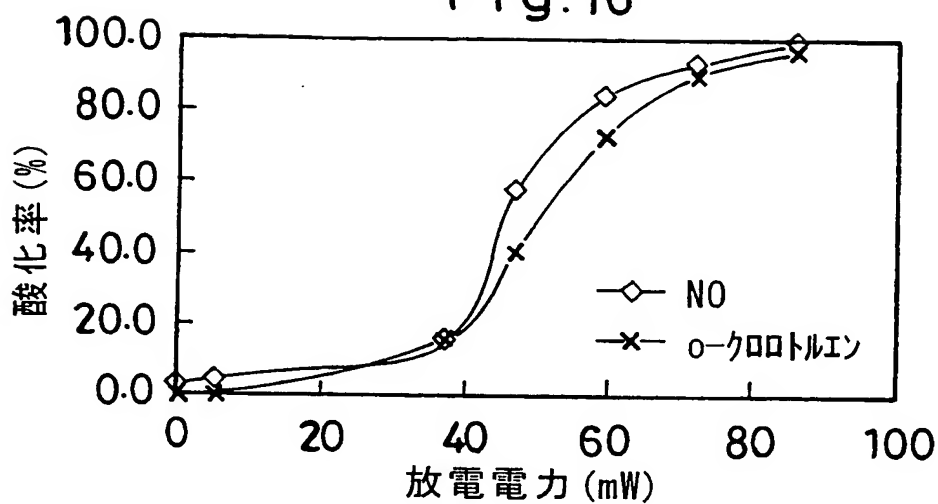


Fig.17

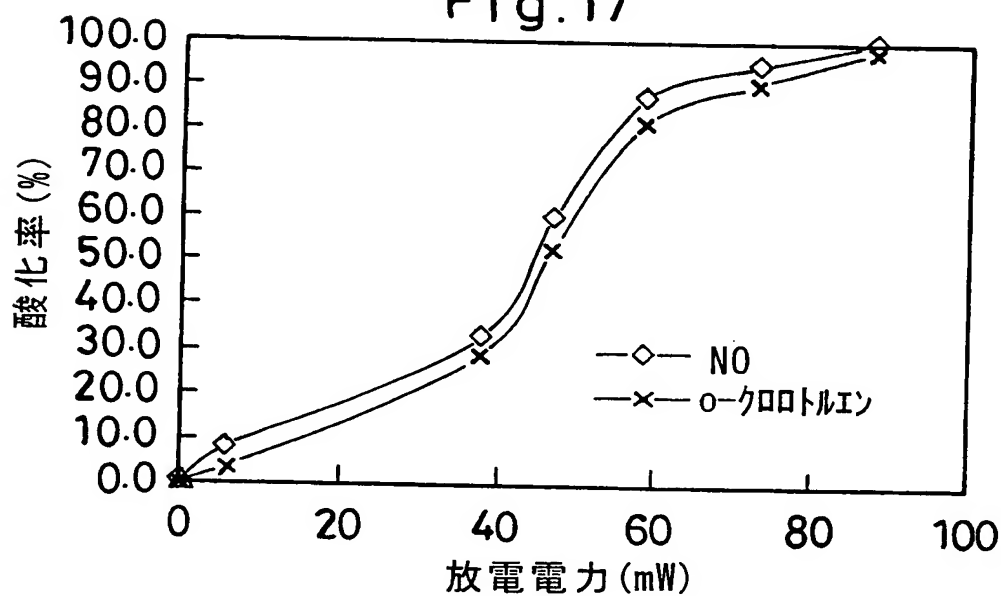


Fig.18

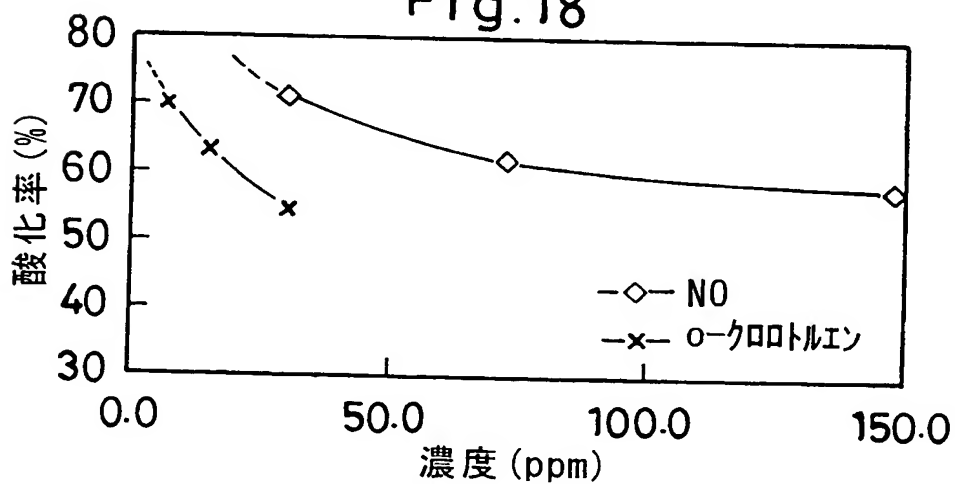




Fig.19

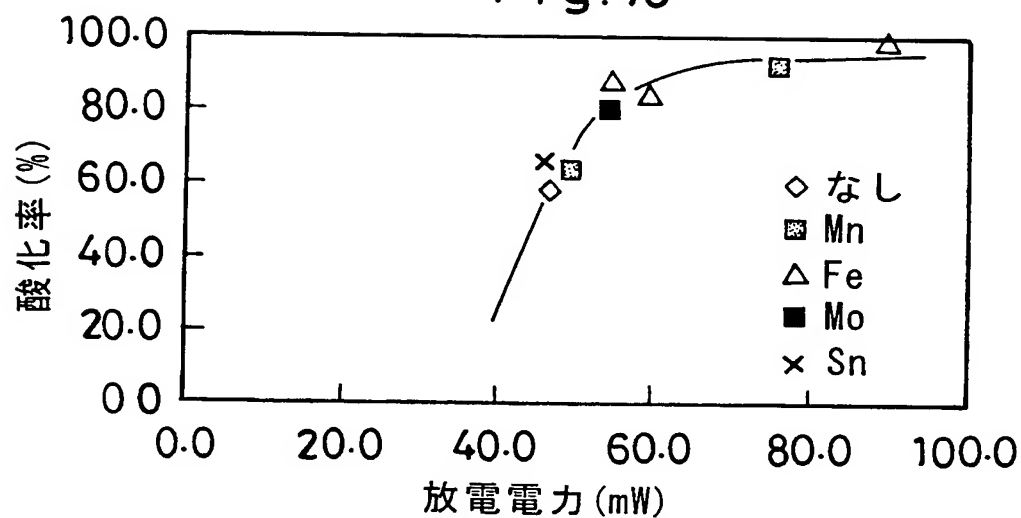


Fig.20

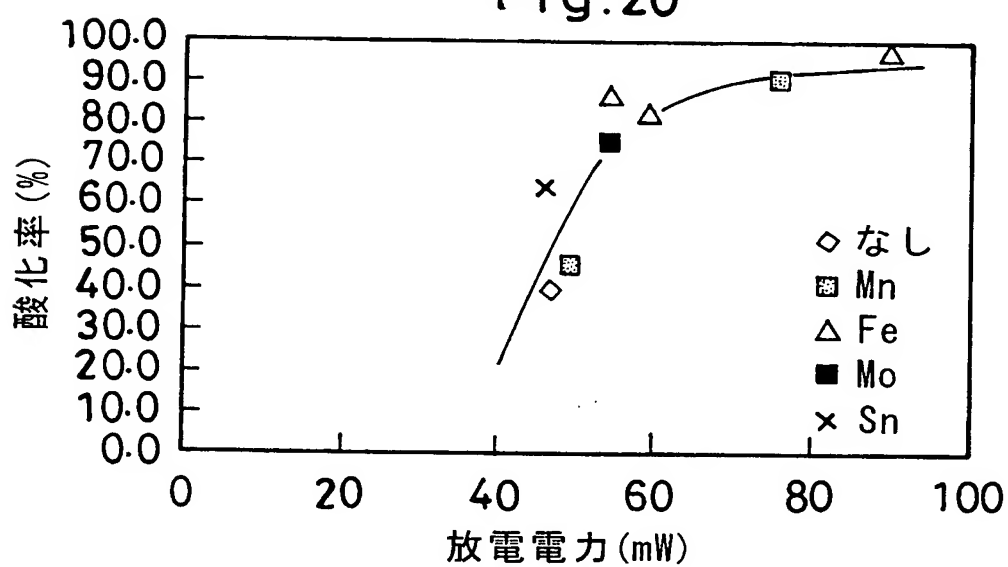
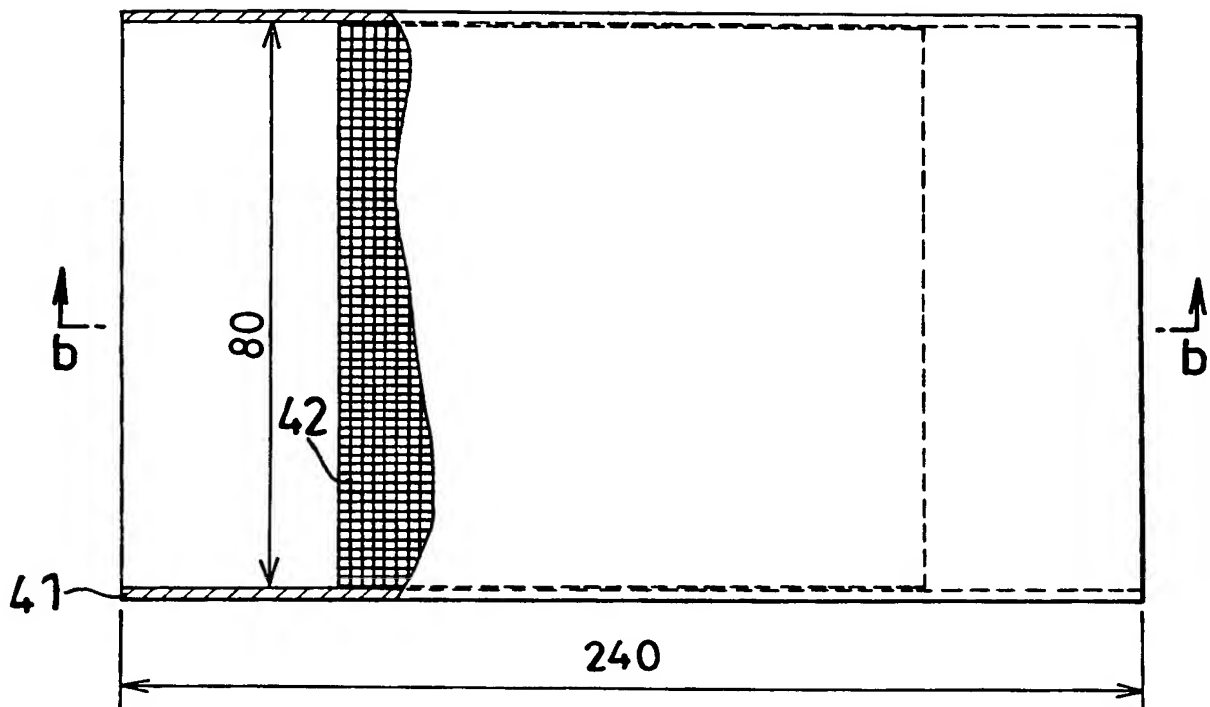
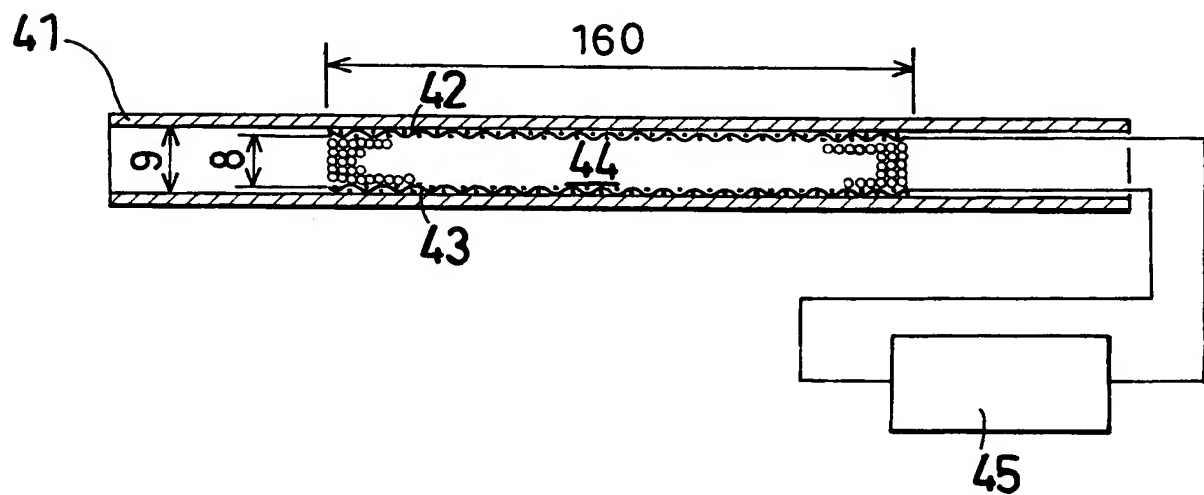




Fig. 21  
(a)



(b)





## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06043

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> B01J 35/02, B01D 53/86, 53/94, B01J 19/24, 19/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B01J 21/00-38/74, B01D 53/32, 53/86, 53/94,  
B01J 19/00-19/32Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Keisai Koho 1996-2000Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
JICST FILE(JOIS) AU: AKIRA MIZUNO\*PHOTPCATALYST  
(in Japanese)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No.  |
|-----------|--|------------------------|
| X         | JP, 8-105317, A (TONEN CORPORATION),   | 1-3, 15-16             |
| Y         | 23 April, 1996 (23.04.96),   | 7, 9-10, 12,           |
| A         | Claims; description, page 2, Column 2, Par. No. 11; page 3, Columns 3 to 4, Par. Nos. 16 to 17; page 3, Column 4, Par. Nos. 21 to 22 (Family: none)        | 15-18<br>4-6           |
| Y         | JP, 6-312115, A (Takuma Co., Ltd.),<br>08 November, 1994 (08.11.94),<br>entire specification, Full text (Family: none)                                     | 17                     |
| Y         | JP, 7-47223, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.),<br>21 February, 1995 (21.02.95),<br>Claims; description, page 2, Column 2, Par. No.1<br>(Family: none) | 18                     |
| Y         | JP, 5-237337, A (Mitsui Engineering & Shipbuilding Co., Ltd.),   | 7, 9-10, 12,           |
| A         | 17 September, 1993 (17.09.93),<br>Claims; example (Family: none)   | 15-18<br>8, 11, 13, 14 |
| Y         | JP, 11-156157, A (Sanki Eng. Co., Ltd.),<br>15 June, 1999 (15.06.99),  | 19-30                  |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

|   |  |
|---|--|
| * Special categories of cited documents:  | "I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  |
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  | "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone   |
| "E" earlier document but published on or after the international filing date  | "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art |
| "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) | "&" document member of the same patent family  |
| "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  |  |
| "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed  |  |

Date of the actual completion of the international search  
12 December, 2000 (12.12.00)Date of mailing of the international search report  
26 December, 2000 (26.12.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06043

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
|           | entire specification, Full text (Family: none)   |                       |
| Y         | JP, 6-15143, A (Mitsui Engineering & Shipbuilding Co., Ltd.),<br>25 January, 1994 (25.01.94),<br>Claims; description, page 2, Column 2, Par. No. 3;<br>page 3, Columns 3 to 4, Par. Nos. 16 to 17; page 4,<br>Column 6, Par. No. 22; Figs. 1, 4, 5 (Family: none)        | 19-30                 |
| Y         | JP, 11-47558, A (Nitto Denko Corporation),<br>23 February, 1999 (23.02.99),<br>Claims; description, page 3, Column 3, Par. No. 9;<br>page 3, Column 4, Par. No. 13; Figs. 3, 4 (Family: none)  | 19-30                 |
| Y         | JP, 11-128768, A (LG Electron. Inc.),<br>18 May, 1999 (18.05.99),<br>Claims; description, page 4, Column 5, Par. No. 19; page<br>4, Columns 5 to 6, Par. Nos. 22 to 25<br>& DE, 19838107, A1 & CN, 1210764, A<br>& KR, 99017057, A & KR, 99017060, A<br>& AU, 9880840, A | 19-30                 |
| Y         | JP, 11-169645, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.),<br>29 June, 1999 (29.06.99),<br>Claims; description, page 2, Column 1, Par. No. 1; page<br>2, Columns 1 to 2, Par. No. 5 (Family: none)   | 19-30                 |
| EX        | JP, 2000-325735, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.),<br>28 November, 2000 (28.11.00),<br>Claims; description, pages 2 to 3, Columns 2 to 3, Par.<br>No. 1; page 5, Column 8, Par. No. 39; page 7, Columns 11<br>to 12, Par. No. 52; Fig. 6 (Family: none)             | 19-29                 |



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06043

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The special technical feature of the inventions of claims 1-18 relates to a catalyst with a discharge electrode or carrier, a catalyst with discharge electrodes, or catalyst block with a discharge electrode comprising a carrier and photocatalyst and the method of its use. The special technical feature of the inventions of claims 19-30 relates to a method and device for decomposing dioxin by using a device fabricated by filling the space between a pair of electrodes with a granular catalyst exhibiting semiconductor characteristics. The structures of the electrodes of the two groups of inventions are quite different from each other. Therefore there is no technical relationship among these groups of inventions involving one or more of the same or corresponding special technical features, and consequently these groups of inventions are not so linked as to form a single inventive concept.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> B 01 J 35/02, B 01 D 53/86, 53/94, B 01 J 19/24, 19/08

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> B 01 J 21/00-38/74, B 01 D 53/32, 53/86, 53/94,  
B 01 J 19/00-19/32

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

|             |            |
|-------------|------------|
| 日本国実用新案公報   | 1926-1996年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1971-2000年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2000年 |
| 日本国実用新案掲載公報 | 1996-2000年 |

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

J I C S T ファイル (J O I S) AU:水野彰\*光触媒

## C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示   | 関連する<br>請求の範囲の番号                           |
|-----------------|---|--|
| X<br>Y<br>A     | JP, 8-105317, A (東燃株式会社) 23. 4月. 1996 (23. 04. 96), 特<br>許請求の範囲, 明細書第2頁第2欄第11段落, 第3頁第3-4欄第16-<br>17段落, 第3頁第4欄第21-22段落 (ファミリーなし) | 1-3, 15-16<br>7, 9-10, 12,<br>15-18<br>4-6 |
| Y               | JP, 6-312115, A (株式会社タクマ) 8. 11月. 1994 (08. 11. 94), 明<br>細書全文 (ファミリーなし)  | 17   |
| Y               | JP, 7-47223, A (三菱重工業株式会社) 21. 2月. 1995 (21. 02. 9<br>5), 特許請求の範囲, 明細書第2頁第2欄第1段落 (ファミリーなし)                                      | 18   |

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12. 12. 00

国際調査報告の発送日

26. 12. 00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
郵便番号 100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
関 美 祝

3月  
印

4G

9045

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |   |  |
|-----------------------|---|--|
| 引用文献の<br>カテゴリー*       | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示   | 関連する<br>請求の範囲の番号                       |
| Y<br>A                | JP, 5-237337, A(三井造船株式会社) 17. 9月. 1993(17. 09. 93), 特許請求の範囲, 実施例(ファミリーなし)   | 7, 9-10, 12,<br>15-18<br>8, 11, 13, 14 |
| Y                     | JP, 11-156157, A(三機工業株式会社) 15. 6月. 1999(15. 06. 99), 明細書全文(ファミリーなし)   | 19-30                                  |
| Y                     | JP, 6-15143, A(三井造船株式会社) 25. 1月. 1994(25. 01. 94), 特許請求の範囲, 明細書第2頁第2欄第3段落, 第3頁第3-4欄第16-17段落, 第4頁第6欄第22段落, 図1, 4, 5(ファミリーなし)   | 19-30                                  |
| Y                     | JP, 11-47558, A(日東電工株式会社) 23. 2月. 1999(23. 02. 99), 特許請求の範囲, 明細書第3頁第3欄第9段落, 第3頁第4欄第13段落, 図3, 4(ファミリーなし)   | 19-30                                  |
| Y                     | JP, 11-128768, A(エルジー エレクトロニクス インコーポレーテッド) 18. 5月. 1999(18. 05. 99), 特許請求の範囲, 明細書第4頁第5欄第19段落, 第4頁第5-6欄第22-25段落&DE, 19838107, A1&CN, 1210764, A&KR, 99017057, A&KR, 99017060, A&AU, 9880840, A | 19-30                                  |
| Y                     | JP, 11-169645, A(積水化学工業株式会社) 29. 6月. 1999(29. 06. 99), 特許請求の範囲, 明細書第2頁第1欄第1段落, 第2頁第1-2欄第5段落(ファミリーなし)  | 19-30                                  |
| EX                    | JP, 2000-325735, A(三菱重工業株式会社) 28. 11月. 2000(28. 11. 00), 特許請求の範囲, 明細書第2-3頁第2-3欄第1段落, 第5頁第8欄第39段落, 第7頁第11-12欄第52段落, 図6(ファミリーなし)  | 19-29                                  |

## 第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-18の特別な技術的特徴は、放電電極付き触媒または担体、複数の放電電極付き触媒または担体と光触媒とからなる放電電極付き触媒ブロック及びその使用方法に関し、請求の範囲19-30の特別な技術的特徴は、一对の電極間に半導体特性を示す粒状触媒を充填したものを使用してダイオキシン類を分解する方法及び装置に関するものであるが、両者の電極の構成は全く異なるものである。したがって、これらの発明は、一又は二以上の同一又は対応する特別な技術的特徴を含む技術的な関係にないから、単一の一般的発明概念を形成するように連関しているものとは認められない。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。



10/069969

6T

## 特 許 協 力 条 約

PCT

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
〔PCT36条及びPCT規則70〕

REC'D 31 AUG 2001

WIPO

PCT

|   |   |                         |
|---|---|-------------------------|
| 出願人又は代理人<br>の書類記号 Q-21  | 今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/<br>IPEA/416）を参照すること。 |                         |
| 国際出願番号<br>PCT/JPO0/06043  | 国際出願日<br>(日.月.年) 06.09.00                             | 優先日<br>(日.月.年) 09.09.99 |
| 国際特許分類 (IPC) Int. Cl. 7 B01J 35/02, B01D 53/86, 53/94,<br>B01J 19/24, 19/08 |   |                         |
| 出願人 (氏名又は名称)<br>水 野 彰   |   |                         |

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 8 ページからなる。
- ☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で 5 ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☒ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☒ ある種の引用文献
- VII ☒ 国際出願の不備
- VIII ☒ 国際出願に対する意見

|  |                             |         |
|--|-----------------------------|---------|
| 国際予備審査の請求書を受理した日<br>09.03.01                                     | 国際予備審査報告を作成した日<br>13.08.01  |         |
| 名称及びあて先<br>日本国特許庁 (IPEA/JP)<br>郵便番号100-8915<br>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 | 待許庁審査官 (権限のある職員)<br>関 美 祝 印 | 4G 9045 |
| 電話番号 03-3581-1101 内線 3416  |                             |         |

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (1998年7月)

D

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1, 4-24 ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 2, 2/1, 3 ページ、 25.06.01 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 7-14, 17-30 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 1, 5, 6, 15, 16 項、 25.06.01 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 図面 第 1-21 ~~ページ~~図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 2-4 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)



## IV. 発明の単一性の欠如

1. 請求の範囲の減縮又は追加手数料の納付の求めに対して、出願人は、

- ☐ 請求の範囲を減縮した。
- ☐ 追加手数料を納付した。
- ☐ 追加手数料の納付と共に異議を申立てた。
- ☐ 請求の範囲の減縮も、追加手数料の納付もしなかった。

2. ☒ 国際予備審査機関は、次の理由により発明の単一性の要件を満たしていないと判断したが、PCT規則68.1の規定に従い、請求の範囲の減縮及び追加手数料の納付を出願人に求めないこととした。

3. 国際予備審査機関は、PCT規則13.1、13.2及び13.3に規定する発明の単一性を次のように判断する。

- ☐ 満足する。
- ☒ 以下の理由により満足しない。

請求の範囲1、5-18の特別な技術的特徴は、放電電極付き触媒または担体、複数の放電電極付き触媒または担体と光触媒とからなる放電電極付き触媒ブロック及びその使用方法に関し、請求の範囲19-30の特別な技術的特徴は、一对の電極間に半導体特性を示す粒状触媒を充填したものを使用してダイオキシン類を分解する方法及び装置に関するものであるが、両者の電極の構成は全く異なるものである。したがって、これらの発明は、一又は二以上の同一又は対応する特別な技術的特徴を含む技術的な関係にないから、単一の一般的発明概念を形成するように連関しているものとは認められない。

4.

したがって、この国際予備審査報告書を作成するに際して、国際出願の次の部分を、国際予備審査の対象にした。

☒ すべての部分

☐ 請求の範囲

に関する部分

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)

|       |         |   |
|-------|---------|---|
| 請求の範囲 | 1, 5-30 | 有 |
| 請求の範囲 |         | 無 |

進歩性(IS)

|       |                        |   |
|-------|------------------------|---|
| 請求の範囲 | 1, 5, 6, 8, 11, 13, 14 | 有 |
| 請求の範囲 | 7, 9-10, 12, 15-30     | 無 |

産業上の利用可能性(IA)

|       |         |   |
|-------|---------|---|
| 請求の範囲 | 1, 5-30 | 有 |
| 請求の範囲 |         | 無 |

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1:JP 8-105317 A(東燃株式会社)23.4月.1996  
 文献2:JP 6-312115 A(株式会社タクマ)8.11月.1994  
 文献3:JP 7-47223 A(三菱重工業株式会社)21.2月.1995  
 文献4:JP 5-237337 A(三井造船株式会社)17.9月.1993  
 文献5:JP 11-156157 A(三機工業株式会社)15.6月.1999  
 文献6:JP 6-15143 A(三井造船株式会社)25.1月.1994  
 文献7:JP 11-47558 A(日東電工株式会社)23.2月.1999  
 文献8:JP 11-128768 A(エルジー エレクトロニクス インコーポレーテッド)18.5月.1999  
 文献9:JP 11-169645 A(積水化学工業株式会社)29.6月.1999

請求の範囲7, 9-10, 12, 15に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献1及び文献4より進歩性を有さない。文献1には、基板上に触媒を担持し、さらに、スクリーン印刷法などにより櫛状等の電極を形成した排ガス中のNO<sub>x</sub>処理装置が記載されている。また、その駆動電界は、200kV/cmであることも記載されている。文献4には、光触媒と複数の電極を備え、放電によるプラズマを利用して光触媒を励起し、排ガスを処理する装置が記載されている。文献4に記載の電極として、文献1に記載のそれ自体に触媒を備えたものを採用することは、共にプラズマを利用して排ガスを処理するものであるから、当業者が容易に想到し得ることと認められる。

請求の範囲16-18に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献1-4より進歩性を有さない。文献4に記載の装置の電極を、文献1に記載のものとし、文献2, 3に記載されているようなダイオキシン処理や脱臭に用いることは、共にプラズマを利用して排ガスを処理するものであるから当業者が容易になし得ることと認められる。

請求の範囲19-30に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献5-9より進歩性を有さない。文献5には、排ガス中のダイオキシンを紫外線と光触媒により処理すること、前段に除塵装置を設けることが記載されている。そして、文献6-9には、プラズマ発生手段と光触媒を併用し、プラズマにより光触媒を励起し排ガスを処理することが記載されている。また、光触媒を、NO<sub>x</sub>や炭化水素の分解に利用することは本出願前周知の事項である。してみると、文献5に記載の排ガス処理装置において、文献6-9に教示されているプラズマによる光触媒の励起手段を採用することは、当業者が容易に想到し得ることと認められる。また、文献8には、光触媒を励起できる適切な電圧について検討することが記載されており、望ましい電圧・電界強度を決定することは当業者が実験的になし得ることと認められる。さらに、後段にNO<sub>x</sub>除去装置などを併設し、排ガスをできるだけ浄化しようとすることも当業者間における常套手段と認められる。

続葉頁あり

VI. ある種の引用文献

1. ある種の公表された文書 (PCT規則70.10)

| 出願番号<br>特許番号   | 公知日<br>(日. 月. 年) | 出願日<br>(日. 月. 年) | 優先日 (有効な優先権の主張)<br>(日. 月. 年) |
|--|------------------|------------------|------------------------------|
| JP, 2000-325735, A<br>「E, X」<br>電極間でプラズマを発生させ、光触媒を励起しダイオキシンを除去するものに関する   | 28.11.00         | 06.10.99         | 16.03.99                     |
| JP, 2001-087620, A<br>「E, X」<br>光触媒作用を有する材料で形成されたハニカム構造体の両端面に、電極及び高周波電源を接続して貫通孔に沿って放電プラズマを発生させ、有害物質を分解するものに関する | 03.04.01         | 27.09.99         |                              |

2. 書面による開示以外の開示 (PCT規則70.9)

| 書面による開示以外の開示の種類 | 書面による開示以外の開示の日付<br>(日. 月. 年) | 書面による開示以外の開示に言及している<br>書面の日付 (日. 月. 年) |
|-----------------|------------------------------|--|
|-----------------|------------------------------|--|

## VII. 国際出願の不備

この国際出願の形式又は内容について、次の不備を発見した。

請求の範囲26, 27の「ダイオキシン類除去方法」は、「ダイオキシン類分解方法」の誤記と認める。

明細書第13頁第23行の「本発明はを」は「本発明を」の誤記と認める。

## Ⅷ. 国際出願に対する意見

請求の範囲、明細書及び図面の明瞭性又は請求の範囲の明細書による十分な裏付についての意見を次に示す。

請求の範囲1の「放電電極付き触媒または担体。」は、触媒に関する発明、担体に関する発明または触媒としても担体としても機能する物質の発明なのか、発明の対象が不明瞭である。

請求の範囲7の「触媒または担体の間および／または外側に配された光触媒」は、光触媒がどのような状態に存在するか不明であり、放電電極付き触媒または担体における触媒との違いも不明瞭である。

また、明細書には、光触媒をセラミック繊維からなる基材に含浸して担持したものしか記載されていないから、請求の範囲7に記載の発明は明細書に十分裏付けられているものとも認められない。

同様に請求の範囲12, 13, 14には「光触媒が平板状または波板状」である旨記載されているが、このような、光触媒自体が平板状または波板状であるものは明細書に記載されておらず、明細書に十分裏付けられているとは認められない。

補充欄（いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること）

## 第 V. 欄の続き

請求の範囲1, 5, 6, 8, 11, 13, 14に係る発明は、国際調査報告で引用された何れの文献にも開示されておらず、新規性を有する。特に、請求の範囲1に記載された、櫛歯形の電極が表裏両面に、裏面電極の各櫛歯が表面電極の各櫛歯とは逆を向くと共に表面電極の各櫛歯の間にそれぞれ位置するように形成された構成は、何れの文献にも開示されていないし、自明なことでもない。

また、請求の範囲1, 5, 6, 8, 11, 13, 14に係る発明は、国際調査報告で引用された文献に対して進歩性を有する。文献1-9には、本願発明の上記構成について記載されておらず、しかもその点は文献1-9に記載された発明から当業者といえども容易に想到し得ないものである。

性が得られず、そこを通過する排ガスの反応率は低いので、全体として高度な有害物質除去率が得られない嫌いがあった。

本発明の第1の目的は、上記諸問題を解決すべく、排ガス中のダイオキシン類などの有害物質をプラズマ放電によって効率的に分解する方法および装置を提供することである。

本発明の第2の目的は、排ガス中のダイオキシン類などの有害物質をプラズマ放電によって効率的に分解する方法に効果的に適用できる、放電電極を備えた触媒または触媒用の担体、また、放電電極を備えた触媒ブロックを提供することである。

#### 発明の開示

本発明による第1の発明は、放電電極付き触媒または担体に関する。

第1の発明による放電電極付き触媒または担体は、板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、点状または、交差していてもよい線状もしくは棒状の電極を備えた放電電極付き触媒または担体であって、電極が、板状またはシート状の触媒または担体の少なくとも片面に、導電性印刷インキをプリントするか、金属粉末を焼結させるか、または金属を蒸着あるいはスパッタリングすることによって形成したものでありかつ櫛歯形であって、触媒または担体の表裏両面に、裏面電極の各櫛歯が表面電極の各櫛歯とは逆を向くと共に表面電極の各櫛歯の間にそれぞれ位置するように、形成されているものである。すなわち、電極の形状は、食い違い状に形成されている。

板状またはシート状の触媒または担体とは、クロス状、ボ

ード状、ペーパー状などのものも含む。導電性印刷インキは銀、銅、場合によっては半田成分合金等の金属を含む。

導電性インキはペースト状のものであってもよい。



好ましい触媒は、セラミック繊維で構成される板状またはシート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセラミック繊維間に、触媒物質またはこれを担持した多孔質担体粒子を分散保持させたものである。触媒物質は、バナジウム、タングステン、モリブデン、チタン等の金属の酸化物、あるいは金、銀、白金、ロジウム、パラジウム、ルテニウム等の金属もしくはその酸化物であってよい。

好ましい担体は、セラミック繊維で構成される板状またはシート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセラミック繊維間に、多孔質担体粒子を分散保持させたものである。

上記多孔質担体は、アルミナ、シリカ、シリカ・アルミナ、チタニア、ゼオライト、ジルコニア、酸化亜鉛などであってよい。

本発明は、高電圧印加による空間放電、絶縁体表面の表面電流発生などを利用して、固体触媒表面の帯電・分極、イオン化や反応物質の電子的分極などを起こさせ、触媒機能を発現または助長するものである。

一対の電極間に半導体粒子を充填し、電極間に高い電圧を印加すると、電子は周辺のガスをイオン化しながら粒子表面を走り（表面電流）、同時に固体結晶を構成する電子を励起しイオン化する。励起された電子が基底状態に戻るとき、電子は原子特有の光（殆ど紫外光）を発する。また、高エネルギーの電子が半導体結晶に衝突すると、複数個の導電帯電子をはじき出し、光触媒の活性発現の基本と考えられる正孔も出現する。このような放電状態はプラズマ放電と呼ばれる。

# 請求の範囲

1. (補正後) 板状またはシート状の触媒または担体の  
少なくとも片面に、点状または、交差していてもよい線状も  
しくは棒状の電極を備えた放電電極付き触媒または担体であ  
5 って、電極が、板状またはシート状の触媒または担体の少な  
くとも片面に、導電性印刷インキをプリントするか、金属粉  
末を焼結させるか、または金属を蒸着あるいはスパッタリン  
グすることによって形成したものでありかつ櫛歯形であって、  
10 触媒または担体の表裏両面に、裏面電極の各櫛歯が表面電極  
の各櫛歯とは逆を向くと共に表面電極の各櫛歯の間にそれぞ  
れ位置するように、形成されている、放電電極付き触媒また  
は担体。

2. (削除)

15 3. (削除)

4. (削除)

5. (補正後) 触媒が、セラミック繊維で構成される板状  
またはシート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセ  
ラミック繊維間に、触媒物質またはこれを担持した多孔質担  
20 体粒子を分散保持させたものである、請求項1記載の放電電  
極付き触媒。

6. (補正後) 担体が、セラミック繊維で構成される板状  
またはシート状のプレフォーム体からなるマトリックスのセ  
ラミック繊維間に、多孔質担体粒子を分散保持させたもので  
25 ある、請求項1記載の放電電極付き担体。

7. 少なくとも片面に、点状または、交差していてもよい線状もしくは棒状の電極を備えた板状またはシート状の複数の電極付き触媒または担体と、これら電極付き触媒ま

媒ブロック。

1 5. (補正後)電極付き触媒または担体の一对の電極間に電極間間隔10mm当たり3~50KVの電圧を0.04~200KHzで印加し、両電極間に触媒または担体を介して放電を起こさせて電極付き触媒または担体を活性化する、請求項1、5、6のいずれかに記載の放電電極付き触媒または担体、もしくは請求項7~14のいずれかに記載の放電電極付き触媒ブロックの使用方法。

1 6. (補正後)請求項1、5、6のいずれかに記載の放電電極付き触媒または担体、もしくは請求項7~14のいずれかに記載の放電電極付き触媒ブロックをガス流通経路内に設置して、一对の電極間に電極間間隔10mm当たり3~50KVの電圧を0.04~200KHzで印加し、両電極間に触媒または担体を介して放電を起こさせて電極付き触媒または担体を活性化し、ガス中の対象成分を接触反応させるガスの触媒反応方法。

1 7. ガスが燃焼排ガスであり、同ガス中のダイオキシン類を酸化・分解し、一酸化窒素を酸化する、請求項16記載の触媒反応方法。

1 8. ガスが有機性臭気成分を含むガスであり、ガス中の臭気成分を酸化・分解する、請求項16記載の触媒反応方法。

1 9. 一对の電極の間に半導体特性を示す粒状触媒を充填し、電極間に電圧を印加して触媒粒子間にプラズマ放電を発生させ、処理すべき排ガスを触媒充填床に流通して排ガス中のダイオキシン類を分解するプラズマ放電によるダイオキシン類分解方法。

2 0. 触媒が光触媒活性を有する請求項19記載のダ



## 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
[PCT18条、PCT規則43、44]

|                          |                           |   |  |
|--------------------------|---------------------------|---|--|
| 出願人又は代理人<br>の書類記号        | Q-21                      | 今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)<br>及び下記5を参照すること。 |  |
| 国際出願番号<br>PCT/JPO0/06043 | 国際出願日<br>(日.月.年) 06.09.00 | 優先日<br>(日.月.年) 09.09.99                                 |  |
| 出願人(氏名又は名称)<br>水野 彰      |                           |   |  |

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 4 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☒ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は

☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 2 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☒ 本図は発明の特徴を一層よく表している。



## 第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。  
つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であって PCT 規則6.4(a) の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-18の特別な技術的特徴は、放電電極付き触媒または担体、複数の放電電極付き触媒または担体と光触媒とからなる放電電極付き触媒ブロック及びその使用方法に関し、請求の範囲19-30の特別な技術的特徴は、一対の電極間に半導体特性を示す粒状触媒を充填したものを使用してダイオキシン類を分解する方法及び装置に関するものであるが、両者の電極の構成は全く異なるものである。したがって、これらの発明は、一又は二以上の同一又は対応する特別な技術的特徴を含む技術的な関係にないから、単一の一般的発明概念を形成するように連関しているものとは認められない。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。





## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> B01J 35/02, B01D 53/86, 53/94, B01J 19/24, 19/08

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> B01J 21/00-38/74, B01D 53/32, 53/86, 53/94,  
B01J 19/00-19/32

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

|             |            |
|-------------|------------|
| 日本国実用新案公報   | 1926-1996年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1971-2000年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2000年 |
| 日本国実用新案掲載公報 | 1996-2000年 |

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JICSTファイル (JOIS) AU:水野彰\*光触媒

## C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示  | 関連する<br>請求の範囲の番号                           |
|-----------------|--|--|
| X<br>Y<br>A     | JP, 8-105317, A (東燃株式会社) 23.4月.1996(23.04.96), 特許請求の範囲, 明細書第2頁第2欄第11段落, 第3頁第3-4欄第16-17段落, 第3頁第4欄第21-22段落 (ファミリーなし) | 1-3, 15-16<br>7, 9-10, 12,<br>15-18<br>4-6 |
| Y               | JP, 6-312115, A (株式会社タクマ) 8.11月.1994(08.11.94), 明細書全文 (ファミリーなし)  | 17   |
| Y               | JP, 7-47223, A (三菱重工業株式会社) 21.2月.1995(21.02.95), 特許請求の範囲, 明細書第2頁第2欄第1段落 (ファミリーなし)                                  | 18   |

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12.12.00

国際調査報告の発送日

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号 100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
関 美 祝



4G

9045

電話番号 03-3581-1101 内線 3416



| C (続き) . 関連すると認められる文献 |  |  |
|-----------------------|--|--|
| 引用文献の<br>カテゴリー*       | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示  | 関連する<br>請求の範囲の番号                       |
| Y<br>A                | JP, 5-237337, A(三井造船株式会社)17.9月.1993(17.09.93), 特許請求の範囲, 実施例(ファミリーなし)   | 7, 9-10, 12,<br>15-18<br>8, 11, 13, 14 |
| Y                     | JP, 11-156157, A(三機工業株式会社)15.6月.1999(15.06.99), 明細書全文(ファミリーなし)   | 19-30                                  |
| Y                     | JP, 6-15143, A(三井造船株式会社)25.1月.1994(25.01.94), 特許請求の範囲, 明細書第2頁第2欄第3段落, 第3頁第3-4欄第16-17段落, 第4頁第6欄第22段落, 図1, 4, 5(ファミリーなし)   | 19-30                                  |
| Y                     | JP, 11-47558, A(日東電工株式会社)23.2月.1999(23.02.99), 特許請求の範囲, 明細書第3頁第3欄第9段落, 第3頁第4欄第13段落, 図3, 4(ファミリーなし)   | 19-30                                  |
| Y                     | JP, 11-128768, A(エルジー エレクトロニクス インコーポレーテッド)18.5月.1999(18.05.99), 特許請求の範囲, 明細書第4頁第5欄第19段落, 第4頁第5-6欄第22-25段落&DE, 19838107, A1&CN, 1210764, A&KR, 99017057, A&KR, 99017060, A&AU, 9880840, A | 19-30                                  |
| Y                     | JP, 11-169645, A(積水化学工業株式会社)29.6月.1999(29.06.99), 特許請求の範囲, 明細書第2頁第1欄第1段落, 第2頁第1-2欄第5段落(ファミリーなし)  | 19-30                                  |
| EX                    | JP, 2000-325735, A(三菱重工業株式会社)28.11月.2000(28.11.00), 特許請求の範囲, 明細書第2-3頁第2-3欄第1段落, 第5頁第8欄第39段落, 第7頁第11-12欄第52段落, 図6(ファミリーなし)  | 19-29                                  |



977  
Translation

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

|  |   |  |
|--|---|--|
| Applicant's or agent's file reference<br>Q-21  | <b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416) |  |
| International application No.<br>PCT/JP00/06043  | International filing date (day/month/year)<br>06 September 2000 (06.09.00)  | Priority date (day/month/year)<br>09 September 1999 (09.09.99) |
| International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC<br>B01J 35/02, B01D 53/86, 53/94, B01J 19/24, 19/08 |   |  |
| Applicant<br>MIZUNO, Akira   |   |  |

|   |  |
|---|--|
| <p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>11</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>5</u> sheets.</p>  |  |
| <p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input checked="" type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input checked="" type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input checked="" type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p> |  |

|  |  |
|--|--|
| Date of submission of the demand<br>09 March 2001 (09.03.01) | Date of completion of this report<br>13 August 2001 (13.08.2001) |
| Name and mailing address of the IPEA/JP                      | Authorized officer   |
| Facsimile No.  | Telephone No.  |



## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages 1,4-24, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages 2,2/1,3, filed with the letter of 25 June 2001 (25.06.2001)
- ☒ the claims:  
pages 7-14,17-30, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages 1,5,6,15,16, filed with the letter of 25 June 2001 (25.06.2001)
- ☒ the drawings:  
pages 1-21, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

## 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

## 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☒ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims, Nos. 2-4
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



10



## IV. Lack of unity of invention

1. In response to the invitation to restrict or pay additional fees the applicant has:

- ☐ restricted the claims.
- ☐ paid additional fees.
- ☐ paid additional fees under protest.
- ☐ neither restricted nor paid additional fees.

2. ☒ This Authority found that the requirement of unity of invention is not complied with and chose, according to Rule 68.1, not to invite the applicant to restrict or pay additional fees.

3. This Authority considers that the requirement of unity of invention in accordance with Rules 13.1, 13.2 and 13.3 is

- ☐ complied with.
- ☒ not complied with for the following reasons:

See supplemental sheet for continuation of Box IV. 3.

4. Consequently, the following parts of the international application were the subject of international preliminary examination in establishing this report:

- ☒ all parts.
- ☐ the parts relating to claims Nos. \_\_\_\_\_



10

## Supplemental Box

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: IV. 3.

The special technical feature of Claims 1 and 5-18 relates to carriers or catalysts with a discharge electrode, a catalyst block with a discharge electrode comprising a plurality of carriers or catalysts with discharge electrodes plus a photocatalyst, and the use thereof, whereas the special technical feature of Claims 19-30 relates to a method and device for decomposing dioxin using a pair of electrodes with a granular catalyst showing semiconductor properties packed between them; and the constitution of the electrodes in the two cases is completely different. Therefore, there is no technical relationship among these inventions involving one or more of the same or corresponding technical features, and they are not so linked as to form a single general inventive concept.



11

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

|                               |        |                        |     |
|-------------------------------|--------|------------------------|-----|
| Novelty (N)                   | Claims | 1, 5-30                | YES |
|                               | Claims |                        | NO  |
| Inventive step (IS)           | Claims | 1, 5, 6, 8, 11, 13, 14 | YES |
|                               | Claims | 7, 9-10, 12, 15-30     | NO  |
| Industrial applicability (IA) | Claims | 1, 5-30                | YES |
|                               | Claims |                        | NO  |

2. Citations and explanations

Document 1: JP, 8-105317, A (Tonen Corp.), 23 April 1996

Document 2: JP, 6-312115, A (Takuma Co., Ltd.), 8 November 1994

Document 3: JP, 7-47223, A (Mitsubishi Heavy Industries Ltd.), 21 February 1995

Document 4: JP, 5-237337, A (Mitsui Engineering & Shipbuilding Co., Ltd.), 17 September 1993

Document 5: JP, 11-156157, A (Sanki Engineering Co., Ltd.), 15 June 1999

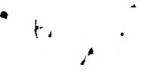
Document 6: JP, 6-15143, A (Mitsui Engineering & Shipbuilding Co., Ltd.), 25 January 1994

Document 7: JP, 11-47558, A (Nitto Denko Corp.), 23 February 1999

Document 8: JP, 11-128768, A (LG Electronics Inc.), 18 May 1999

Document 9: JP, 11-169645, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 29 June 1999

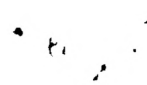
The inventions set forth in Claims 7, 9, 10, 12 and 15 do not involve an inventive step in the light of Documents 1 and 4 cited in the international search report. Document 1 discloses a device for treating NOx in waste gas, wherein a catalyst is supported on a base and then electrodes are formed in a shape such as a comb shape



by a process such as screen printing. It also indicates that the drive field thereof is 200 kV/cm. Document 4 discloses a device for treating waste gas, wherein a photocatalyst and a plurality of electrodes are provided and the photocatalyst is excited by using discharge plasma. A person skilled in the art could easily conceive of adopting the electrodes disclosed in Document 1, which come with a catalyst, as the electrodes disclosed in Document 4, since both relate to the use of plasma for treating waste gas.

The inventions set forth in Claims 16-18 do not involve an inventive step in the light of Documents 1-4 cited in the international search report. A person skilled in the art could easily use electrodes disclosed in Document 1 as electrodes in a device disclosed in Document 4 and use said device for decolorization and/or treatment of dioxin as disclosed in Documents 2 and 3, since all these documents relate to treatment of waste gas using plasma.

The inventions set forth in Claims 19-30 do not involve an inventive step in the light of Documents 5-9 cited in the international search report. Document 5 discloses treatment of dioxin in waste gas by means of UV radiation and a photocatalyst, and mentions use of a dust-removing device at an earlier stage. Similarly, Documents 6-9 disclose combined use of a plasma generating means and a photocatalyst in order to excite the photocatalyst by means of plasma and treat waste gas; and use of catalysts in the decomposition of NO<sub>x</sub> and hydrocarbons was known before the present application. Therefore, a person skilled in the art could easily conceive of adopting plasma as a means of exciting the photocatalyst as taught in Documents 6-9, within a device for treating waste gas





disclosed in Document 5. Document 8 also mentions investigation of suitable voltages for exciting photocatalysts, and the desired voltage and field intensity are such as can be decided by a person skilled in the art based on trial and error. Addition of a device for removing NOx at a later stage in order to render the waste gas as clean as possible is conventional practice within the art.

The inventions set forth in Claims 1, 5, 6, 8, 11, 13 and 14 are not disclosed in any of the documents cited in the international search report, and are novel. Specifically, none of the documents discloses formation of electrodes in rows like the teeth of a comb on the front surface and rear surface such that the rows of electrodes on the rear surface run in the opposite direction to the electrodes on the front surface, and are intercalated with the electrodes on the front surface, and this feature is not obvious.

The inventions set forth in Claims 1, 5, 6, 8, 11, 13 and 14 also involve an inventive step relative to the documents cited in the international search report. Documents 1-9 do not disclose the aforementioned constitution of these inventions in the present application, and it could not be deduced easily by a person skilled in the art from the inventions disclosed in Documents 1-9.



2

## VI. Certain documents cited

## 1. Certain published documents (Rule 70.10)

Application No.  
Patent No.

Publication date  
(day/month/year)

Filing date  
(day/month/year)

Priority date (valid claim)  
(day/month/year)

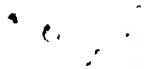
\*See supp.sheet

## 2. Non-written disclosures (Rule 70.9)

Kind of non-written disclosure

Date of non-written disclosure  
(day/month/year)

Date of written disclosure  
referring to non-written disclosure  
(day/month/year)



## Supplemental Box

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: VI. 1.

JP, 2000-325735, A            28.11.00   06.10.99   16.03.99  
[E,X]

Relates to removal of dioxin by generating plasma between electrodes and exciting a photocatalyst.

JP, 2001-087620, A            03.04.01   27.09.99  
[E, X]

Relates to removal of harmful substances by connecting electrodes and a high frequency power source to both end surfaces of a honeycomb structure formed of a material having a photocatalyst action, and generating plasma through the holes.



## VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

In Claims 26 and 27, "method for removing dioxins" is an error for "method for decomposing dioxins".

In the description, page 13, line 23, "the present invention [topic + object]" is an error for "the present invention [object]"





## VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

The subject of the invention of "a carrier or catalyst with a discharge electrode" in Claim 1 is unclear, since it could be an invention relating to a catalyst, an invention relating to a carrier, or an invention relating to a substance which can function either as a catalyst or a carrier.

The form of the photocatalyst is unclear in Claim 7, "a photocatalyst arranged between and/or outside the catalyst or carrier"; and the difference between the catalysts in the carrier or catalyst with a discharge electrode is also unclear.

Moreover, the description only describes a photocatalyst supported by permeation into a base material comprising ceramic fibres; therefore, the invention set forth in Claim 7 is not fully supported by the description.

Similarly, Claims 12, 13 and 14 state that "the photocatalyst is in the form of a flat sheet or wavy sheet", but this is not fully supported by the description, since the description does not mention that the photocatalyst as such can be a flat sheet or wavy sheet.



What is amended is:

- (1) Specification, page 2, line 25 to page 3, line 2, change "comprises a catalyst or carrier in the form of a plate or sheet, the electrode being provided on at least one surface of the catalyst or carrier plate or sheet and being in the form of dots, or a line or bar which may intersect itself. to -- comprises a catalyst or carrier in the form of a plate or sheet, the electrode being provided on at least one surface of the catalyst or carrier plate or sheet and being in the form of dots, or a line or bar which may intersect itself, the electrode being formed by applying an electrically conductive printing ink to at least one surface of the catalyst or carrier plate or sheet by printing, sintering a metal powder on the surface, or vapor-depositing or sputtering a metal onto the surface, the electrode being in the form of comb teeth, the electrode being formed on each of front and rear surfaces of the catalyst or carrier plate or sheet, and the rear and front electrodes being oriented in opposite directions to each other in an interdigital arrangement.--
- (2) Specification, page 3, lines 5 to 11, change "The electrode is formed on at least one surface of the platelike or sheetlike catalyst or carrier, preferably by applying an electrically conductive printing ink containing a metal such as silver, copper, or an alloy of solder components to the surface by printing, sintering a metal powder on the surface, or vapor-depositing or sputtering a metal onto the surface." to --The electrically conductive printing ink contains a metal



such as silver, copper, or an alloy of solder components.--

(3) Specification, page 3, lines 12 to 16 , delete "Preferably, the electrode is in the form of comb teeth. It is desirable that the comb-tooth electrode be formed on each of the front and rear surfaces of the catalyst or carrier, such that the rear and front electrodes are oriented in opposite directions to each other in an interdigital arrangement."

(4) Claims, page 32, line 6 (claim 1), after "or a line or bar which may intersect itself insert --, the electrode being formed by applying an electrically conductive printing ink to at least one surface of the catalyst or carrier plate or sheet by printing, sintering a metal powder on the surface, or vapor-depositing or sputtering a metal onto the surface, the electrode being in the form of comb teeth, the electrode being formed on each of front and rear surfaces of the catalyst or carrier plate or sheet, and the rear and front electrodes being oriented in opposite directions to each other in an interdigital arrangement--.

(5) Claims, page 32, delete claim 2.

(6) Claims, page 32, delete claim 3.

(7) Claims, page 32, delete claim 4.

(8) Claims, page 32, lines 22 and 23 (claim 5), change "according to any one of claims 1 to 4" to --according to claim 1--.

(9) Claims, page 33, lines 2 and 3 (claim 6), change "according to any one of claims 1 to 4" to --according to claim 1--.

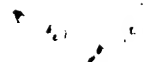
(10) Claims, page 34, lines 20 (claim 15), change "according to any one of claims 1 to 6" to --according to any one of claims



100

1, 5 and 6--.

(11) Claims, page 35, lines 1 and 2 (claim 16), change "according to any one of claims 1 to 6" to --according to any one of claims 1, 5 and 6--.





or carrier plate or sheet and being in the form of dots, or a line or bar which may intersect itself.

The catalyst or carrier in the form of a plate or sheet includes one in the form of a cloth, board, paper or the like.

5       The electrode is formed on at least one surface of the platelike or sheetlike catalyst or carrier, preferably by applying an electrically conductive printing ink containing a metal such as silver, copper, or an alloy of solder components to the surface by printing, sintering a metal powder on the  
10       surface, or vapor-depositing or sputtering a metal onto the surface. The conductive ink may be in the form of a paste.

          Preferably, the electrode is in the form of comb teeth. It is desirable that the comb-tooth electrode be formed on each of the front and rear surfaces of the catalyst or carrier,  
15       such that the rear and front electrodes are oriented in opposite directions to each other in an interdigital arrangement.

          Preferably, the catalyst comprises a matrix in the form of a plate or sheet of preform prepared from ceramic fibers, and a catalyst substance or porous carrier particles dispersed  
20       and retained in the matrix among the ceramic fibers, the carrier particles having the catalyst substance supported thereon. The catalyst substance is an oxide of a metal such as vanadium, tungsten, molybdenum, titanium or the like, or a metal such as gold, silver, platinum, rhodium, palladium or ruthenium,  
25       or an oxide of the metal.

          Preferably, the carrier comprises a matrix in the form of a plate or sheet of preform prepared from ceramic fibers,



## CLAIMS

1. A catalyst or carrier having a discharge electrode and comprising a catalyst or carrier in the form of a plate or sheet, the electrode being provided on at least one surface  
5 of the catalyst or carrier plate or sheet and being in the form of dots, or a line or bar which may intersect itself.

2. A catalyst or carrier having a discharge electrode according to claim 1 wherein the electrode is one formed by applying an electrically conductive printing ink to at least  
10 one surface of the catalyst or carrier plate or sheet by printing, sintering a metal powder on the surface, or vapor-depositing or sputtering a metal onto the surface.

3. A catalyst or carrier having a discharge electrode according to claim 1 or 2 wherein the electrode is in the form  
15 of comb teeth.

4. A catalyst or carrier having a discharge electrode according to claim 3 wherein the comb-tooth electrode is formed on each of front and rear surfaces of the catalyst or carrier plate or sheet, and the rear and front electrodes are oriented  
20 in opposite directions to each other in an interdigital arrangement.

5. A catalyst having a discharge electrode according to any one of claims 1 to 4 wherein the catalyst comprises a matrix in the form of a plate or sheet of preform prepared from ceramic  
25 fibers, and a catalyst substance or porous carrier particles dispersed and retained in the matrix among the ceramic fibers, the carrier particles having the catalyst substance supported



thereon.

6. A carrier having a discharge electrode according to any one of claims 1 to 4 wherein the carrier comprises a matrix in the form of a plate or sheet of preform prepared from ceramic  
5 fibers, and porous carrier particles dispersed and retained in the matrix among the ceramic fibers.

7. A catalyst block having discharge electrodes and comprising a plurality of catalyst or carrier plates or sheets and each having an electrode formed on at least one surface  
10 thereof, the electrode being in the form of dots, or a line or bar which may intersect itself, and a photocatalyst interposed between the plates or sheets and/or disposed externally thereof.

8. A catalyst block having discharge electrodes according to claim 7 wherein the catalyst plate or sheet having the electrode  
15 and the photocatalyst each comprise a matrix in the form of a plate or sheet of preform prepared from ceramic fibers, and a catalyst substance or porous carrier particles dispersed and retained in the matrix among the ceramic fibers, the carrier particles having the catalyst substance supported thereon.

20 9. A catalyst block having discharge electrodes according to claim 7 or 8 wherein the electrode is formed by applying an electrically conductive printing ink to at least one surface of the catalyst or carrier plate or sheet by printing, sintering a metal powder on the surface, or vapor-depositing or sputtering  
25 a metal onto the surface.

10. A catalyst block having discharge electrodes according to any one of claims 7 to 9 wherein the electrode is in the form of comb teeth.



11. A catalyst block having discharge electrodes according to claim 10 wherein the comb-tooth electrode is formed on each of front and rear surfaces of the catalyst or carrier plate or sheet, and the rear and front electrodes are oriented in  
5 opposite directions to each other in an interdigital arrangement.

12. A catalyst block having discharge electrodes according to any one of claims 7 to 11 wherein the photocatalyst is a granular or particulate catalyst or in the form of a flat plate or corrugated plate.

10 13. A catalyst block having discharge electrodes according to any one of claims 7 to 12 wherein the catalyst or carrier plate or sheet having the electrode is a flat plate, and the photocatalyst is in the form of a corrugated plate.

14. A catalyst block having discharge electrodes according  
15 to any one of claims 7 to 12 wherein the flat catalyst or carrier plates having the electrode have ends projecting beyond a corrugated photocatalyst plate, and the electrodes are connected together at the projecting ends.

15. A method of using a catalyst or carrier having a discharge  
20 electrode according to any one of claims 1 to 6, or a catalyst block having discharge electrodes according to any one of claims 7 to 14 by applying a voltage of 3 to 50 kV per 10 mm of the electrode spacing across a pair of electrodes on the catalyst or carrier plates or sheets each having the electrode at 0.04  
25 to 200 kHz to cause a discharge across the electrodes through the catalyst or carrier and thereby activate the catalyst or carrier plates or sheets.

16. A method of catalytic reaction of a gas by installing





a catalyst or carrier having a discharge electrode according to any one of claims 1 to 6 or a catalyst block having discharge electrodes according to any one of claims 7 to 14 in a flow channel for the gas, and applying a voltage of 3 to 50 kV per  
5 10 mm of the electrode spacing across a pair of electrodes at 0.04 to 200 kHz to cause a discharge across the electrodes through the catalyst or carrier and activate the catalyst or carrier, whereby components contained in the gas and to be treated are catalytically reacted.

10 17. A method of catalytic reaction according to claim 16 wherein the gas is a combustion exhaust gas, and by which dioxins in the gas are oxidized and decomposed, and nitrogen monoxide in the gas is oxidized.

15 18. A method of catalytic reaction according to claim 16 wherein the gas is a gas containing organic odor components and by which the odor components of the gas are oxidized and decomposed.

19. A method of decomposing dioxins by plasma discharge comprising filling a particulate catalyst exhibiting  
20 semiconductor characteristics into a space between a pair of electrodes, applying a voltage across the electrodes to cause plasma discharge between the catalyst particles, and passing an exhaust gas to be treated through a bed filled with the catalyst to decompose dioxins in the exhaust gas.

25 20. A method of decomposing dioxins according to claim 19 wherein the catalyst has photocatalyst activity.

21. A method of decomposing dioxins according to claim 19 wherein the catalyst is a titania catalyst.



## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> B01J 35/02, B01D 53/86, 53/94, B01J 19/24, 19/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> B01J 21/00-38/74, B01D 53/32, 53/86, 53/94,  
B01J 19/00-19/32

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Keisai Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JICST FILE (JOIS) AU: AKIRA MIZUNO\*PHOTPCATALYST  
(in Japanese)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No.  |
|-----------|---|------------------------|
| X         | JP, 8-105317, A (TONEN CORPORATION),  | 1-3, 15-16             |
| Y         | 23 April, 1996 (23.04.96),  | 7, 9-10, 12,           |
| A         | Claims; description, page 2, Column 2, Par. No. 11; page 3, Columns 3 to 4, Par. Nos. 16 to 17; page 3, Column 4, Par. Nos. 21 to 22 (Family: none) | 15-18<br>4-6           |
| Y         | JP, 6-312115, A (Takuma Co., Ltd.),   | 17                     |
|           | 08 November, 1994 (08.11.94),<br>entire specification, Full text (Family: none)   |                        |
| Y         | JP, 7-47223, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.),   | 18                     |
|           | 21 February, 1995 (21.02.95),<br>Claims; description, page 2, Column 2, Par. No. 1 (Family: none)   |                        |
| Y         | JP, 5-237337, A (Mitsui Engineering & Shipbuilding Co., Ltd.),  | 7, 9-10, 12,           |
| A         | 17 September, 1993 (17.09.93),<br>Claims; example (Family: none)  | 15-18<br>8, 11, 13, 14 |
| Y         | JP, 11-156157, A (Sanki Eng. Co., Ltd.),  | 19-30                  |
|           | 15 June, 1999 (15.06.99),   |                        |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
12 December, 2000 (12.12.00)Date of mailing of the international search report  
26 December, 2000 (26.12.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
|           | entire specification, Full text (Family: none)   |                       |
| Y         | JP, 6-15143, A (Mitsui Engineering & Shipbuilding Co., Ltd.),<br>25 January, 1994 (25.01.94),<br>Claims; description, page 2, Column 2, Par. No. 3;<br>page 3, Columns 3 to 4, Par. Nos. 16 to 17; page 4,<br>Column 6, Par. No. 22; Figs. 1, 4, 5 (Family: none)        | 19-30                 |
| Y         | JP, 11-47558, A (Nitto Denko Corporation),<br>23 February, 1999 (23.02.99),<br>Claims; description, page 3, Column 3, Par. No. 9;<br>page 3, Column 4, Par. No. 13; Figs. 3, 4 (Family: none)  | 19-30                 |
| Y         | JP, 11-128768, A (LG Electron. Inc.),<br>18 May, 1999 (18.05.99),<br>Claims; description, page 4, Column 5, Par. No. 19; page<br>4, Columns 5 to 6, Par. Nos. 22 to 25<br>& DE, 19838107, A1 & CN, 1210764, A<br>& KR, 99017057, A & KR, 99017060, A<br>& AU, 9880840, A | 19-30                 |
| Y         | JP, 11-169645, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.),<br>29 June, 1999 (29.06.99),<br>Claims; description, page 2, Column 1, Par. No. 1; page<br>2, Columns 1 to 2, Par. No. 5 (Family: none)   | 19-30                 |
| EX        | JP, 2000-325735, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.),<br>28 November, 2000 (28.11.00),<br>Claims; description, pages 2 to 3, Columns 2 to 3, Par.<br>No. 1; page 5, Column 8, Par. No. 39; page 7, Columns 11<br>to 12, Par. No. 52; Fig. 6 (Family: none)             | 19-29                 |



**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The special technical feature of the inventions of claims 1-18 relates to a catalyst with a discharge electrode or carrier, a catalyst with discharge electrodes, or catalyst block with a discharge electrode comprising a carrier and photocatalyst and the method of its use. The special technical feature of the inventions of claims 19-30 relates to a method and device for decomposing dioxin by using a device fabricated by filling the space between a pair of electrodes with a granular catalyst exhibiting semiconductor characteristics. The structures of the electrodes of the two groups of inventions are quite different from each other. Therefore there is no technical relationship among these groups of inventions involving one or more of the same or corresponding special technical features, and consequently these groups of inventions are not so linked as to form a single inventive concept.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest** ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.





## P. INT COOPERATION TREA.

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
 US Department of Commerce  
 United States Patent and Trademark  
 Office, PCT  
 2011 South Clark Place Room  
 CP2/5C24  
 Arlington, VA 22202  
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
 in its capacity as elected Office

|  |  |
|--|--|
| Date of mailing (day/month/year)<br>01 June 2001 (01.06.01)                |  |
| International application No.<br>PCT/JP00/06043                            | Applicant's or agent's file reference<br>Q-21                  |
| International filing date (day/month/year)<br>06 September 2000 (06.09.00) | Priority date (day/month/year)<br>09 September 1999 (09.09.99) |
| Applicant<br>MIZUNO, Akira et al   |  |

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

09 March 2001 (09.03.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

|   |   |
|---|---|
| The International Bureau of WIPO<br>34, chemin des Colombettes<br>1211 Geneva 20, Switzerland<br>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35 | Authorized officer<br>Henrik Nyberg<br>Telephone No.: (41-22) 338.83.38 |
|---|---|

